Tome 22 N° 8-9 AOUT-SEPTEMBRE 1961

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

LA DILATATION THERMIQUE DU MILIEU CRISTALLIN

Par J. LAVAL,
Collège de France, Paris.

II

Le coefficient de dilatation

Résumé. — Cette seconde étude a pour objet le calcul du coefficient de dilatation et de sa dérivée par rapport à la température.
Le coefficient de dilatation est rapporté directement à l'énergie potentielle et aux translations élémentaires du milieu cristallin. On trouve qu'il croît avec la température, en gros, comme la chaleur spécifique à volume constant. Il s'annule au zéro absolu, et quand la température approche du point de fusion, il augmente avec la température absolue à peu près selon la loi parabolique.

Abstract. — The object of this second study is the calculation of the linear expansion coefficient and of its derivative with reference to temperature.
The expansion coefficient is directly referred to the potential energy and to the elementary vibrations of the crystalline medium. We find that it increases with temperature, roughly as the specific heat at constant volume. It is annuled at absolute zero and when the temperature comes near to the melting-point, it increases with the absolute temperature nearly according to the parabolic law.

A. **Le coefficient de dilatation.** — Quand la température s'élève de $\mathrm{d}\Theta$, la tension thermique T (12) (¹) croît de

$$\mathrm{d}T = \left(\frac{\mathrm{d}T_1}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}T_2}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}T_3}{\mathrm{d}\Theta} + \ldots\right)\mathrm{d}\Theta. \quad (32)$$

et, d'après les expressions de T_1 (13), de T_2 (17) et de T_3 (18),

$$\frac{\mathrm{d}T_1}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{\partial T_1}{\partial v}\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{1}{\mathcal{N}}\sum_{S\tau}\left[\frac{\partial T_1}{\partial W}\left(\frac{\partial W}{\partial \Theta}\right)_\omega + \left(\frac{\partial T_1}{\partial \omega}\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}v} + \frac{\partial T_1}{\partial g}\frac{\mathrm{d}g}{\mathrm{d}v}\right)\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}\Theta}\right]_{S\tau}$$

$$\frac{\mathrm{d}T_2}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{\partial T_2}{\partial v}\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{2b}{\mu v}W_m\frac{\mathrm{d}W_m}{\mathrm{d}\Theta}$$

$$\frac{\mathrm{d}T_3}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{\partial T_3}{\mathrm{d}v}\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{3c}{\mu v}W_m^2\frac{\mathrm{d}W_m}{\mathrm{d}\Theta}. \quad (33)$$

(¹) Les formules dont les numéros vont de 1 à 31, et les références bibliographiques dont les numéros vont de [1] à [5] se trouvent dans la première partie du mémoire « Les facteurs de la dilatation *J. Physique Rad.* Juillet 1961, **22**, **451** ».

D'autre part, selon la théorie de l'élasticité, la dilatation $\alpha\,\mathrm{d}\Theta$ développe une tension

$$\mathrm{d}T = (c^{11} + 2\,c^{12})\,\alpha\mathrm{d}\Theta = \frac{\mathcal{C}\alpha}{v}\mathrm{d}\Theta. \quad (34)$$

Cette tension est égale (en valeur absolue) à l'accroissement (32-33) de la tension thermique. Compte tenu des fonctions $\mathcal{E}$ (4) et $\mathcal{F}$ (5) et des relations (11), l'égalité des expressions (32) et (34) donne :

$$\alpha\left\{\mathcal{C} + \frac{3}{\mu}\left[Q + \frac{1}{\mathcal{N}}\sum_{S\tau}\left[\frac{g}{\omega^2}\left(\hbar\omega\mathcal{F}\frac{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.v} - W\frac{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.v}\right)\right]_{S\tau} + W_m^2\,(b + cW_m)\right]\right\}$$

$$= \frac{k}{\mu}\left[\frac{1}{\mathcal{N}}\sum_{S\tau}\left[\frac{g\,\mathcal{E}}{\omega^2}\right]_{S\tau} + W_m\,\mathcal{E}_m\,(2b + 3cW_m)\right]; \quad (35)$$

$$\frac{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.v} = \frac{v}{\omega}\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}v}; \qquad \frac{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\,\mathrm{Log}.v} = \frac{v}{g}\frac{\mathrm{d}g}{\mathrm{d}v}.$$

$\mathcal{E}_m$ est la fonction d'Einstein (4) qui se rapporte à à une oscillation harmonique de fréquence

$$\nu_m\left(\frac{\Theta_F}{2}\right) (16).$$

Posons :

$$G = \frac{1}{\mathcal{N}}\sum_{S\tau}\left[\frac{g\mathcal{E}}{\omega^2}\right]_{S\tau}, \qquad (36)$$

$$J = W_m\,\mathcal{E}_m\,(2b + 3cW_m). \qquad (37)$$

$$H = \frac{1}{\mathcal{N}}\sum_{S\tau}\left[\frac{g}{\omega^2}\left[W\left(1 - \frac{\mathrm{d\,Log}.g}{\mathrm{d\,Log}.v}\right) + \hbar\omega\mathcal{F}\frac{\mathrm{d\,Log}.\omega}{\mathrm{d\,Log}.v}\right]\right]_{S\tau} \qquad (38)$$

$$K = W_m^2\,(b + cW_m). \qquad (39)$$

Comme le facteur Q (14), et pour la même raison, à température constante, les facteurs G (36) et H (38) sont constants, caractéristiques de l'espèce cristalline. Les facteurs J (37) et K (39), et le coefficient $\mathcal{C}$ (8) ont la même propriété. Et de l'égalité (35) nous déduisons le coefficient d'élasticité :

$$\alpha = \frac{k(G + J)}{\mu\mathcal{C} + 3(H + K)}. \qquad (40)$$

Les expressions de G (36) et de J (37) contiennent en facteur la fonction d'Einstein $\mathcal{E}$ (4) qui s'annule quand la température tend vers le zéro absolu. Donc le coefficient de dilatation α s'annule aussi quand la température tombe au zéro absolu.

Dès que les fonctions d'Einstein $\mathcal{E}_{S\tau}$ (4) atteignent, dans l'ensemble, sensiblement l'unité, ce qui se produit déjà à la température ordinaire pour la plupart des cristaux envisagés, nous avons grossièrement :

$$\alpha = \frac{3k\xi}{\mu\mathcal{C}}.$$

D'où il vient :

$$\xi = \frac{\mu\mathcal{C}\alpha}{3k}. \qquad (41)$$

En portant dans cette expression les coefficients d'élasticité mesurés, et compte tenu des grandeurs négligées, J, H et K, on trouve (¹) :

(²)	Al	Feα (³)	Cu	
$\xi \times 10^{22}$ gramme	0,93	1,6	2	(42)

(¹) Ces facteurs ξ se rapportent aux coefficient $\mathcal{C}$ qui sont déterminés par les modules de compressibilité $\varkappa$ $\left(\varkappa = \frac{1}{\Gamma}\right)$ du fer α à 130 °C. ($\varkappa_{Fe} = 0{,}664 \times 10^{-12}$) et du cuivre à 20 °C ($\varkappa_{Cu} = 0{,}75 \times 10^{-12}$) mesurés par Grüneisen [6], et par le module de compressibilité de l'aluminium à 20 °C, mesuré par Bridgmann [7] ($\varkappa_{Al} = 1{,}37 \times 10^{-12}$).

(²) Le facteur ξ est homogène à une masse.

(³) Compte tenu des pulsations $\omega_{S\tau}$ déterminées par H. Curien [8] on retombe, par l'expression (9), à peu près sur la grandeur $1{,}6 \times 10^{-22}$ pour le facteur ξ du fer α, si l'on prend les coefficients $D_a^{\alpha\beta\beta}$ suivants (en unités C. G. S.) :

$D_a^{\alpha\beta\beta} \simeq 1{,}6 \times 10^{12}$ pour $a = l\sqrt{3}$ (premiers voisins).

$D_a^{\alpha\beta\beta} \simeq 1{,}2 \times 10^{12}$ pour $a = 2l$ (seconds voisins).

$D_a^{\alpha\beta\beta} \simeq 0{,}2 \times 10^{12}$ pour $a = 2l\sqrt{2}$ (troisièmes voisins).

Ces coefficients sont bien compatibles avec les constantes de rappel déterminées par H. Curien [8].

Présentement, l'énergie potentielle du milieu cristallin n'est pas définie avec une précision suffisante pour qu'on puisse en déduire, même approximativement, ses dérivées cinquièmes et septièmes par rapport aux translations qui transportent les positions moyennes des atomes les unes sur les autres. De ce fait, les coefficients b (28) et c (29), et partant les facteurs J (37) et K (39) ne peuvent être calculés. D'autre part, les coefficients d'élasticité mesurés permettent seulement d'atteindre l'ordre de grandeur de ces deux facteurs, soit la part que les tensions secondaires T_2 (28) et T_3 (29) prennent ensemble à la dilatation, et non la part qui revient à chacune d'elles. Le coefficient b oscille probablement entre 10^{-9} et 10^{-10} (unités C. G. S.). Quant au coefficient c son ordre de grandeur même reste inconnu. Afin de développer le calcul de la dilatation, je supposerai que ce coefficient s'élève aux environs de 10^2 unités C. G. S. (J'admets, de la sorte, que le rapport c/b est grossièrement égal au rapport ξ/b.)

B. **La dérivée $\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}\Theta}$ du coefficient de dilatation.** — De l'expression (40), on déduit :

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{k\left(\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta}\right) - 3\alpha\left(\mu\mathcal{C}\alpha\frac{\mathrm{d\,Log}.\mathcal{C}}{\mathrm{d\,Log}.v} + \frac{\mathrm{d}H}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}K}{\mathrm{d}\Theta}\right)}{\mu\mathcal{C} + 3(H + K)} \qquad (43)$$

Le facteur H (38) croît avec la température :

$$\frac{\mathrm{d}H}{\mathrm{d}\Theta} = \left(\frac{\partial H}{\partial\Theta}\right)_\omega + 3\alpha\left(\omega\left(\frac{\partial H}{\partial\omega}\right)_\Theta\frac{\mathrm{d\,Log}.\omega}{\mathrm{d\,Log}.v} + H\frac{\partial\,\mathrm{Log}.H}{\partial\,\mathrm{Log}.v}\right). \qquad (44)$$

Un calcul détaillé révèle que le second terme,

$$3\alpha\left(\omega\left(\frac{\partial H}{\partial\omega}\right)_\Theta\frac{\mathrm{d\,Log}.\omega}{\mathrm{d\,Log}.v} + H\frac{\partial\,\mathrm{Log}.H}{\partial\,\mathrm{Log}.v}\right),$$

de la dérivée $\frac{\mathrm{d}H}{\mathrm{d}\Theta}$ (44) reste, à toute température, très petit par rapport au premier $\frac{\partial H}{\partial\Theta}$, et par rapport à

$$\frac{k}{3\alpha}\left(\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta}\right), \quad \mu\mathcal{C}\alpha\frac{\mathrm{d\,Log}.\mathcal{C}}{\mathrm{d\,Log}.v} \quad \text{et} \quad \frac{\mathrm{d}K}{\mathrm{d}\Theta}.$$

Nous négligerons donc ce second terme dans le calcul de la dérivée, c'est-à-dire nous poserons :

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{k\left(\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta} + \frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta}\right) - 3\alpha\left(\mu\mathcal{C}\alpha\frac{\mathrm{d\,Log}.\mathcal{C}}{\mathrm{d\,Log}.v} + \left(\frac{\partial H}{\partial\Theta}\right)_\omega + \frac{\mathrm{d}K}{\mathrm{d}\Theta}\right)}{\mu\mathcal{C} + 3(H + K)} \qquad (45)$$

Les expressions des facteurs G (36), J (37), H (38) et K (39) donnent :

$$\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta} = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[\frac{g}{\omega^2} \left(\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \Theta}\right)_\omega + 3\alpha g \left[\omega \frac{\partial}{\partial \omega} \left(\frac{\mathcal{E}}{\omega^2}\right)_\Theta \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} + \frac{\mathcal{E}}{\omega^2} \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right]\right]_{S\tau}. \quad (46)$$

$$\frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta} = k\, \mathcal{E}_m^2 \,(2b + 6c\, W_m) + W_m \frac{\mathrm{d}\ \mathcal{E}_m}{\mathrm{d}\Theta} (2b + 3c\, W_m). \quad (47)$$

$$\left(\frac{\partial H}{\partial \Theta}\right)_\omega = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[k \frac{\mathcal{E} g}{\omega^2} \left(1 - \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right) + \frac{g\hbar}{\omega} \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} \left(\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \Theta}\right)_\omega\right]_{S\tau}. \quad (48)$$

$$\frac{\mathrm{d}K}{\mathrm{d}\Theta} = k\, W_m\, \mathcal{E}_m\, (2b + 3c\, W_m). \quad (49)$$

et, compte tenu de l'expression qui définit la fonction $\mathcal{F}$ (5), il vient :

$$\frac{g\hbar}{\omega} \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} \left(\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \Theta}\right)_\omega = \frac{kg}{\omega^2} \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} \frac{x^3\, e^x\, (e^x + 1)}{(e^x - 1)^3}. \quad (50)$$

C. **Les grandeurs qui déterminent le coefficient de dilatation.** — Les facteurs G, J, H, K et leurs dérivées $\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta}$, $\frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta}$, $\left(\frac{\partial H}{\partial \Theta}\right)_\omega$, $\frac{\mathrm{d}K}{\mathrm{d}\Theta}$ ont, au zéro absolu, et à température élevée, les grandeurs suivantes :

	$\Theta = 0$ $(x = \infty)$	$\Theta \gg \frac{h\nu_{S\tau}}{k}$ $(x \ll 1)$
G	0	3ξ
J	0	$k\Theta(2b + 3ck\Theta)$
H	$\frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[\frac{\hbar g}{2\omega} \left(1 - \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} + \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right)\right]_{S\tau}$	$\frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[\frac{gk\Theta}{\omega^2} \left(1 - \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} + 2 \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right)\right]_{S\tau}$ $\simeq 3\xi k\Theta$ (d'après la relation (26))
K	$\frac{\hbar^2 \omega_m^2}{4} \left(b + c \frac{\hbar \omega_m}{2}\right)$	$k^2 \Theta^2 (b + ck\Theta)$
$\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta}$	0	$\frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[\frac{g\hbar^2}{6k^2 \Theta^3} + \frac{3\alpha g}{\omega^2} \left(\frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v} - 2 \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right)\right]_{S\tau}$ $\simeq \frac{\hbar^2}{6k^2 \Theta^3} \cdot \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} g_{S\tau}$ (d'après la relation (26)).
$\frac{\mathrm{d}J}{\mathrm{d}\Theta}$	0	$2k(b + 3ck\Theta)$
$\left(\frac{\partial H}{\partial \Theta}\right)_\omega$	0	$\frac{k}{\mathcal{N}} \sum_{S\tau} \left[\frac{g}{\omega^2} \left(1 - \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.g}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega} + 2 \frac{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.\omega}{\mathrm{d}\ \mathrm{Log}.v}\right)\right]_{S\tau}$ $\simeq 3\xi k$ (d'après la relation (26)).
$\frac{\mathrm{d}K}{a\Theta}$	0	$k^2 \Theta (2b + 3ck\Theta) = kJ.$

Quand la température s'élève dès le zéro absolu, le facteur H (38) diminue d'abord légèrement, puis augmente et finit par croître comme $3\xi k\Theta$. D'autre part, le facteur K (39) augmente constamment à température croissante. Mais, même lorsque la température est à peine inférieure au point de fusion, la somme 3 $(H + K)$ n'atteint que le dixième, environ, du produit $\mu\mathcal{C}$. Et, comme le coefficient $\mathcal{C}$ (8) diminue rapidement lorsque la dilatation grandit — en gros comme une fonction exponentielle décroissante de la dilatation —, dans les formules (40) et (45), qui expriment le coefficient de dilatation α et sa dérivée $\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}\Theta}$, le dénominateur $\mu\mathcal{C} + 3(H + K)$ diminue sans cesse à température croissante.

Nulle au zéro absolu, la dérivée $\frac{\mathrm{d}G}{\mathrm{d}\Theta}$ (46) croît d'abord lorsque la température s'élève ; elle passe par un maximum à une température Θ_M plus basse que la température où la dérivée $\frac{\mathrm{d}\mathcal{E}\ (\nu_M(\Theta_M))}{\mathrm{d}\Theta}$ (formule 6, *fig.* 1) s'annule, c'est-à-dire :

$$\Theta_M < \frac{h\nu_M\ (\Theta_M)}{4{,}5k}, \quad (51)$$

$\nu_M(\Theta_M)$ étant la fréquence moyenne (16) des oscillations fondamentales à la température Θ_M [1] ; puis la

[1] Quand la température s'abaisse, la fréquence moyenne ν_m (27) s'élève donc

$$\nu_M\ (\Theta_M) > \nu_m \left(\frac{\Theta_F}{2}\right).$$

dérivée $\frac{dG}{d\Theta}$ décroît, et, quand $\frac{h\nu_{M(\Theta_M)}}{k\Theta}$ tombe au-dessous de l'unité, elle diminue sensiblement comme $1/\Theta^3$.

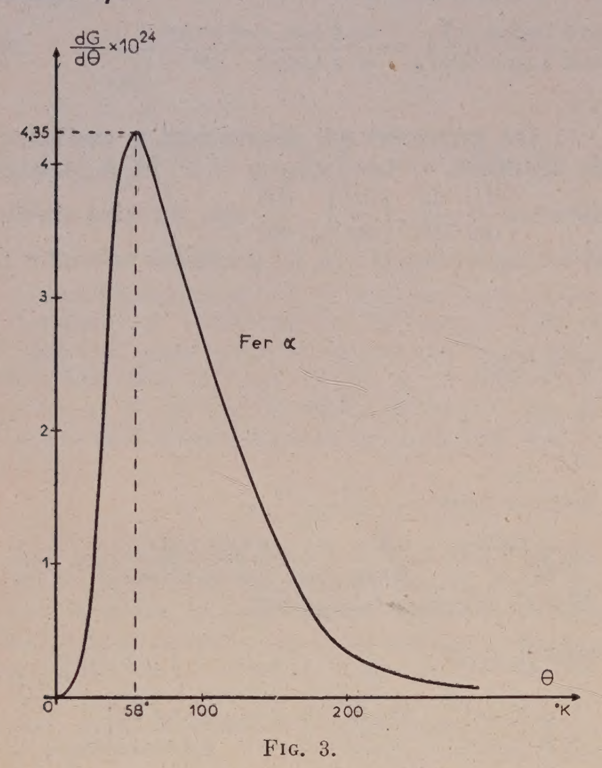


FIG. 3.

La courbe de la figure 3 représente, en fonction de Θ, la variation de la dérivée $\frac{dG}{d\Theta}$ pour le fer α. Elle se rapporte à la densité $\rho(\nu)$, déterminée par H. Curien [8], son maximum se situe à 58 °K environ ([1]).

D'autre part, les expressions des tensions T_2 (28) et T_3 (29) donnent :

$$\frac{dJ}{d\Theta} = \frac{1}{k}\left[b\,\frac{d^2 W_m^2}{d\Theta^2} + c\,\frac{d^2 W_m^3}{d\Theta^2}\right].$$

L'énergie moyenne W_m (3) est celle d'un oscillateur linéaire dont la fréquence $\nu_m\left(\frac{\Theta_F}{2}\right)$ (27) est constante. Les dérivées

$$\frac{d^2 W_m^2}{d\Theta^2} \quad \text{et} \quad \frac{d^2 W_m^3}{d\Theta^2},$$

varient donc en fonction de la température comme les dérivées partielles

$$\left(\frac{\partial^2 W^2}{\partial\Theta^2}\right)_\omega \quad \text{et} \quad \left(\frac{\partial^2 W^3}{\partial\Theta^2}\right)_\omega.$$

([1]) Pour le fer α, $\nu_M(\Theta_M) \simeq 6{,}2 \times 10^{12}\ s^{-1}$, et $\frac{h\nu_M(\Theta_M)}{4{,}5\,k} \simeq 66$ °K.

Quand la température s'élève, la fonction

$$\frac{1}{2k^2}\left(\frac{\partial^2 W^2}{\partial\Theta^2}\right)_\omega = \frac{1}{k}\left(k\,\varepsilon^2 + W\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\Theta}\right)_\omega\right),$$

nulle au zéro absolu, commence par croître, passe par un maximum de 1,45 pour x égal à 3,9, puis diminue, et, lorsque x devient inférieur à l'unité, elle tend vers l'unité (courbe de la figure 4).

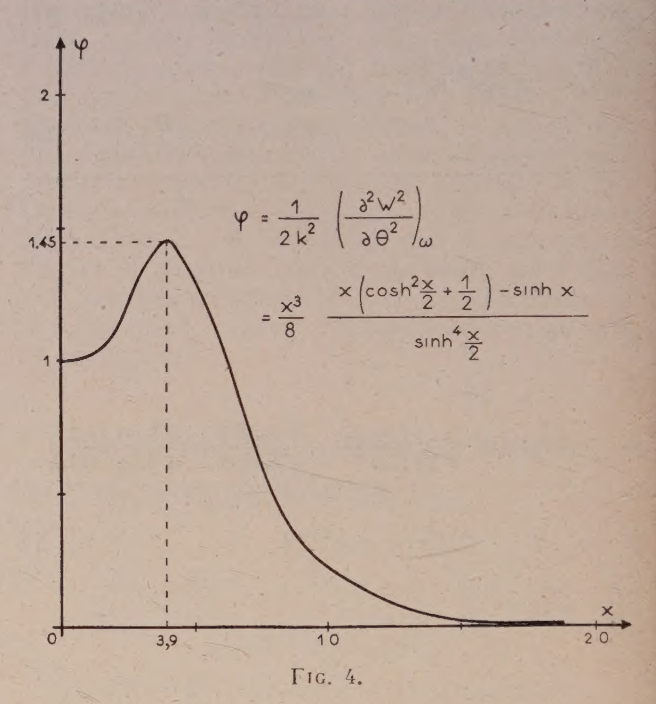


FIG. 4.

La fonction

$$\frac{1}{3k^2\hbar\omega}\left(\frac{\partial^2 W^3}{\partial\Theta^2}\right)_\omega = \frac{W}{k\hbar\omega}\left(2k\varepsilon^2 + W\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\Theta}\right)_\omega\right),$$

s'annule aussi quand la température tend vers le zéro absolu ; et lorsque la température s'élève elle augmente constamment, sensiblement comme Θ dès que x décroît au-dessous de l'unité. Toutefois, quand elle devient égale à 0,82 environ, pour $x = 3{,}7$, sa dérivée seconde s'annule (courbe de la figure 5).

En conséquence, lorsque la température s'élève à partir du zéro absolu, la dérivée $\frac{dJ}{d\Theta}$, nulle à cette température, commence par croître, passe par un maximum pour $\frac{h\nu_{M(\Theta_M)}}{k\Theta}$ légèrement plus grand que 3,9, donc à une température plus élevée que la température Θ_M (51), puis décroît légèrement, tombe à un minimum pour $\frac{h\nu}{k\Theta}$ aux environs de 1, enfin croît en gros comme Θ. Mais, compte tenu des données expérimentales, le maximum de la dérivée $\frac{dJ}{d\Theta}$ reste petit par rapport au maximum de la

dérivée $\frac{dG}{d\Theta}$ (probablement inférieur au dixième de ce dernier). Donc, aux basses températures, la variation de la dérivée $\frac{d\alpha}{d\Theta}$, en fonction de Θ, est déterminée principalement par celle de la dérivée $\frac{dG}{d\Theta}$.

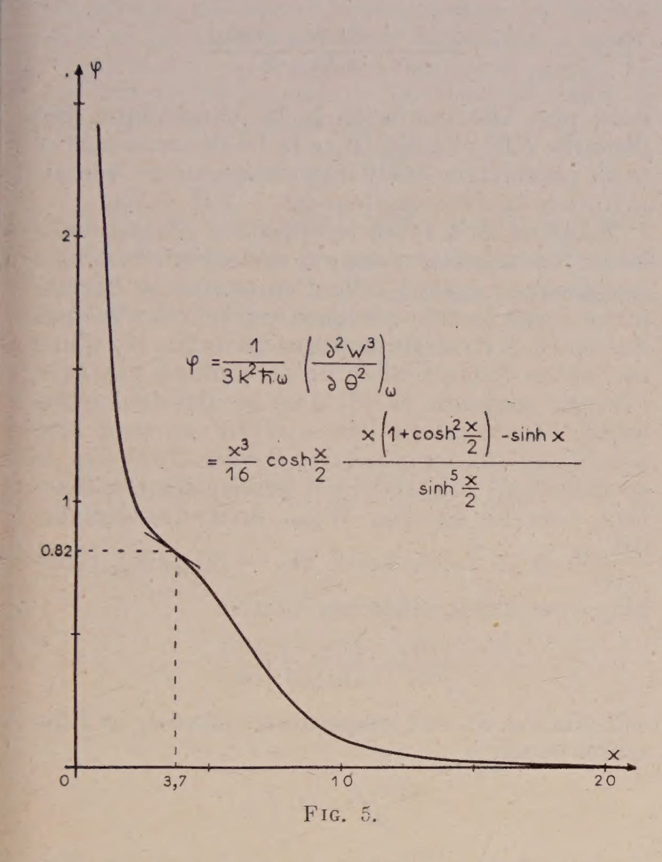


Fig. 5.

Et, tant que la température Θ reste inférieure à Θ_M, nous avons approximativement :

$$\frac{d\alpha}{d\Theta} = \frac{k\frac{dG}{d\Theta}}{\mu C}.$$

Aux température élevées, quand la différence relative $\frac{\Theta_F - \Theta}{\Theta_F}$ tombe au-dessous du dixième $\left(\Theta \gg \frac{h\nu_m\left(\frac{\Theta_F}{2}\right)}{k}\right)$, la dérivée $\frac{dG}{d\Theta}$ devient négligeable par rapport à la dérivée $\frac{dJ}{d\Theta}$. Donc, aux températures élevées, nous avons de même approximativement :

$$\frac{d\alpha}{d\Theta} = \frac{k^2}{\mu C + 3(H+K)}\,[2\,(b + 3\,ck\Theta) + \sigma\,(\Theta)], \qquad (52)$$

$$\sigma(\Theta) = \frac{3\,[3\xi + k\Theta\,(2b + 3ck\Theta)]^2}{\mu C + 3\,(H+K)} \times \left[\frac{1}{1 + \frac{3\,(H+K)}{\mu C}}\left|\frac{d\,\mathrm{Log}.C}{d\,\mathrm{Log}.v}\right| - 1\right].$$

Notons que pour tous les cristaux cubiques envisagés le module de la dérivée $\frac{d\,\mathrm{Log}\,C}{d\,\mathrm{Log}\,v}$ excède fortement l'unité (pour les cristaux de cuivre il s'élève aux environs de 5.

D. **La variation du coefficient de dilatation.** — Quand la température tend vers le zéro absolu, le coefficient de dilatation α (40) et les dérivées $\frac{dG}{d\Theta}$ (46) et $\frac{dJ}{d\Theta}$ (47) s'annulent ; donc la dérivée $\frac{d\alpha}{d\Theta}$ tombe aussi à zéro (courbe *OD*, *fig.* 6). Lorsque la température s'élève à partir du zéro absolu, la déri-

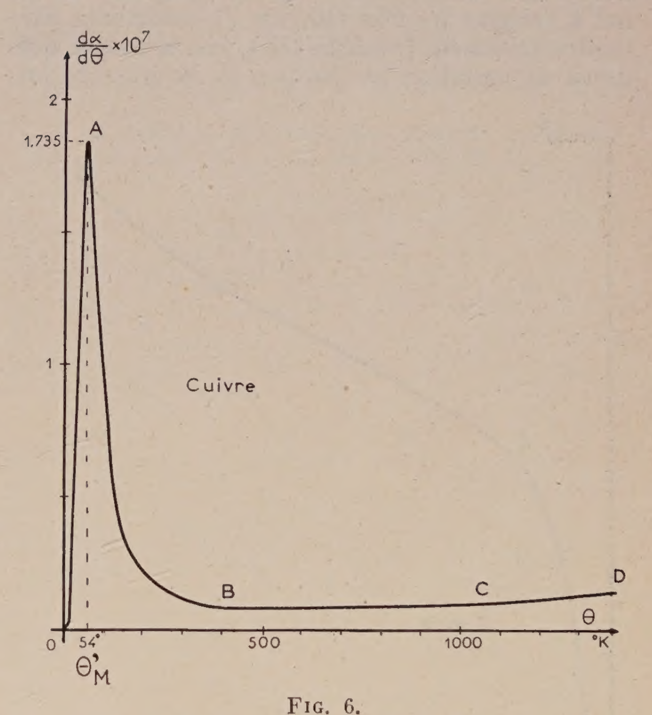


Fig. 6.

La courbe OD concerne la dilatation des cristaux de cuivre. Elle se rapporte aux grandeurs suivantes :

1) densité des fréquences $\rho(\nu)$ à 290 °K déterminée par E. Jacobsen [9], et compte tenu de mesures plus récentes, par la diffusion des neutrons, faites par D. Cribier (non publiées) ;

ν_0 étant la fréquence au zéro absolu, on admet que :

$\nu(\Theta) = \nu_0\, e^{-a\delta(\Theta)}$; $a = 2{,}83$; $\delta(\Theta) = \int_0^\Theta \beta(\Theta)\, d\Theta$;

$\xi = 2 \times 10^{-22}$ (25) ; $b = 3 \times 10^{-10}$ (28) ; $c = 3 \times 10^2$ (29) ; $\mu = 1{,}055 \times 10^{-22}$ (unités C. G. S.).

C_0 étant la grandeur du coefficient C (8) au zéro absolu, on a pris :

$C(\Theta) = C_0\, e^{-\gamma\delta(\Theta)}$; $C_0 = 4{,}87 \times 10^{-11}$ (C. G. S.) ; $\gamma = 5$

vée $\frac{d\alpha}{d\Theta}$ croît (branche OA), passe par un maximum qui, compte tenu du facteur J (37-47), se situe à une température Θ'_M légèrement plus haute que la température Θ_M (51), mais inférieure, de peu, à la température $\Theta = \frac{h\nu_M(\Theta'_M)}{4,5\,k}$ ($\nu_M(\Theta'_M)$ étant la fréquence moyenne des oscillations fondamentales dans le cristal à la température Θ'_M) ; puis la dérivée $\frac{d\alpha}{d\Theta}$ décroît (branche AB), devient à peu près constante aux températures moyennes (branche BC) ; enfin, quand la température atteint le voisinage du point de fusion, elle augmente de nouveau avec Θ sensiblement selon l'expression (52), donc plus vite qu'elle croîtrait selon la loi linéaire (branche CD).

En conséquence, quand la température s'élève, dès le zéro absolu, le coefficient de dilatation α, nul à l'origine (courbe OD, *fig.* 7), commence par croître lentement (branche OA), puis la courbe qui décrit sa variation en fonction de Θ présente un

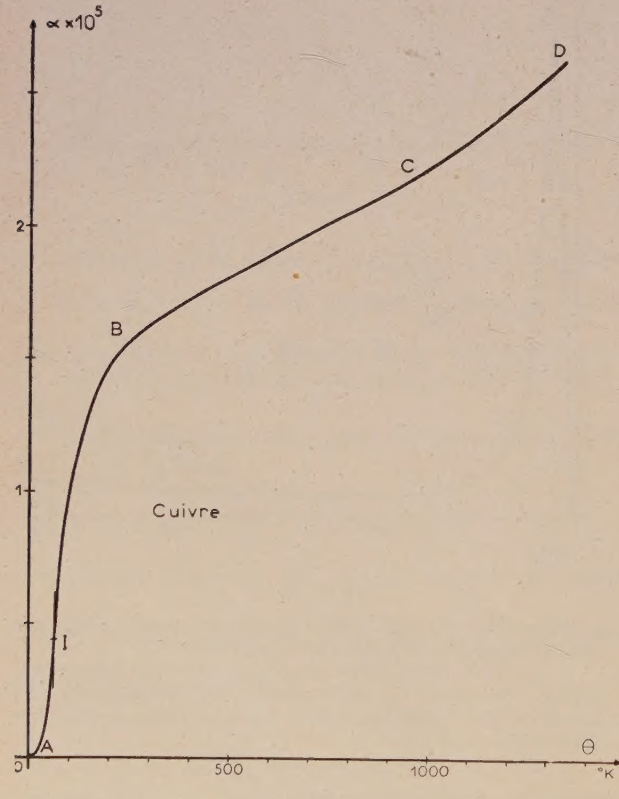


Fig. 7.
Coefficient de dilatation linéaire du cuivre calculé à partir des grandeurs prises en compte pour évaluer la dérivée $\frac{d\alpha}{d\Theta}$. Grüneisen a mesuré la dilatation du cuivre entre 186 °K et 873 °K, Dans cet intervalle de température, les coefficients de dilatation calculés se confondent à 10^{-2} près avec les coefficients mesurés par Grüneisen [10].

point d'inflexion I à la température Θ'_M (branche AB) ; ensuite, aux températures moyennes, le coefficient croît approximativement selon la loi linéaire (branche BC) ; enfin, aux températures élevées, proches du point de fusion, il augmente sensiblement comme

$$\frac{k\,[3\xi + k\Theta(2b + 3ck\Theta)]}{\mu C + 3(H + K)},$$

donc plus vite que selon la loi parabolique (53) (branche CD) ; l'écart entre sa loi de croissance et la loi parabolique étant dû principalement à la diminution du dénominateur $\mu C + 3(H + K)$.

J'admets qu'à toute température chaque oscillation fondamentale conserve une énergie moyenne sensiblement égale à celle d'un oscillateur harmonique ayant la même fréquence (3). Cela n'est pas démontré. Si l'énergie moyenne véritable, W_f, d'une oscillation fondamentale ne se confond pas avec l'énergie moyenne W (3) d'un oscillateur harmonique, l'écart relatif $|W_f - W|/W$ ne peut être notable qu'aux températures élevées. Toutefois, le coefficient de dilatation est principalement fonction, non des énergies $W_{f,s\tau}$, mais des dérivées $\frac{dW_{f,s\tau}}{d\Theta}$, et un faible écart $|W_f - W|_{s\tau}/W_{s\tau}$ n'implique pas que la différence relative

$$\left|\frac{dW_f}{d\Theta} - \frac{dW}{d\Theta}\right|_{s\tau} \Big/ \left|\frac{dW}{d\Theta}\right|,$$

soit minime. Si, aux températures élevées, les différences relatives

$$\left|\frac{dW_{f,s\tau}}{d\Theta} - k\right| \Big/ k,$$

deviennent considérables, le coefficient de dilatation est, à ces températures, plus grand ou plus petit que le coefficient prévu, selon que les écarts

$$\frac{dW_{f,s\tau}}{d\Theta} - k,$$

sont positifs ou négatifs.

Notons que, même si l'énergie moyenne W_f d'une oscillation fondamentale ne se confond pas avec celle d'un oscillateur harmonique, le coefficient d'élasticité α reste déterminé, comme je l'ai établi, par les fonctions (4) et (5) et les dérivées (6) et (7). Mais ces fonctions et ces dérivées se rapportent à l'énergie moyenne véritable W_f.

La dilatation thermique des cristaux métalliques a été l'objet de nombreuses mesures. Mais presque toutes ont été faites sur des cristaux à des températures moyennes (branche BC de la courbe OD, *fig.* 7) et les intervalles de températures qu'elles couvrent sont le plus souvent fort restreints (quelques dizaines de degrés centésimaux). Il importe de connaître la dilatation dans deux zones de températures restées jusqu'ici inexplorées.

1° Aux basses températures, afin de vérifier, d'une part, si le coefficient de dilatation et sa dérivée s'annulent au zéro absolu, d'autre part si la courbe (*OD*, *fig.* 7) qui décrit la variation de ce coefficient en fonction de la température porte un point d'inflexion. Si ce point d'inflexion existe, il est possible de repérer la température Θ'_M où il se situe, et par cette température de déterminer approximativement la fréquence moyenne $\nu_M(\Theta'_M)$ des oscillations fondamentales qui ont lieu dans le cristal à la température Θ'_M (1).

$$\nu_{M(\Theta'_M)} \simeq \frac{4{,}5k\Theta'_M}{h} + \varepsilon.$$

(1) La fréquence moyenne $\nu_M(\Theta'_M)$ trouvée se rapporte à la température Θ'_M, et non à la température $\frac{\Theta_F}{2}$, et comme les fréquences des oscillations fondamentales s'abaissent quand la température s'élève, on a

$$\nu_M(\Theta'_M) > \nu_m\left(\frac{\Theta_F}{2}\right).$$

2° Mais c'est surtout aux températures élevées, immédiatement au-dessous du point de fusion, qu'il convient de mesurer la dilatation avec une haute précision. Cette mesure révèlerait l'importance des tensions thermiques secondaires, et sinon la grandeur exacte, tout au moins l'ordre de grandeur des dérivées cinquièmes et septièmes de l'énergie potentielle, et peut-être même la variations des facteurs $\xi_{s\tau,s'\tau'}$ (30) et $\xi_{s\tau,s'\tau's''\tau''}$ (31) en fonction de la température.

Remarquons enfin que le coefficient de dilatation est essentiellement fonction des rapports de grandeurs entre les dérivées successives de l'énergie potentielle et non de la grandeur absolue de ces dérivées.

Manuscrit reçu le 11 avril 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[6] Grüneisen (E.), *Ann. Physik*, 1910, **33**, 1239.
[7] Bridgman (P. W.), *Proc. Amer. Acad.*, 1923, **58**, 163.
[8] Curien (H.), *Bull. Soc. Fr. Minéralogie*, 1952, **75**, 197, 343.
[9] Jacobsen (E. H.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, (3), 654.
[10] Grüneisen (E.), *Ann. Physik*, 1908, **26**, 24.

L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE FONDAMENTAL DES SEMI-CONDUCTEURS ET DU Cs_3Sb

Par A. MEESSEN,
Centre de Physique Nucléaire, Université de Louvain, Belgique.

Résumé. — Une théorie de l'effet photoélectrique fondamental est proposée, pour le cas de transitions directes, verticales et pour le cas de transitions indirectes entre la bande de valence et la bande de conduction. La confrontation et la discussion des résultats expérimentaux pour le Cs_3Sb permet de détacher l'effet photoélectrique fondamental d'effets secondaires et de donner quelques orientations nouvelles pour d'autres recherches expérimentales. La profondeur d'émission des photoélectrons diminue quand on s'approche du seuil photoélectrique, ce qui est dû aux diffusions sur les centres d'impuretés.

Abstract. — A theory of the fundamental photoelectric effect is proposed for both direct and indirect transitions from the valence band to the conduction band. Comparison and discussion of the numerous experimental results for Cs_3Sb allows one to separate the fundamental photoelectric effect from secondary effects and to suggest new lines for other experimental research. The photoelectric emission depth becomes smaller near to the photoelectric threshold of the electron scattering by impurity centers.

Introduction. — L'effet photoélectrique des métaux a été décrit théoriquement comme un effet de surface. Ce n'est que récemment qu'on a été conduit à l'introduction d'une nouvelle théorie basée sur l'idée d'un effet de volume [1, 2].

L'effet photoélectrique des semiconducteurs par contre fut toujours considéré comme un effet de volume, surtout parce que la distribution spectrale de l'efficience photo-électrique reflète celle de l'absorption optique qui est un effet de volume, mais aussi parce que l'efficience photoélectrique est bien plus grande que dans le cas des métaux. D'ailleurs Burton [3] a estimé la profondeur d'émission des photoélectrons dans le cas du semiconducteur Cs_3Sb, à environ 250 Å.

Les semiconducteurs présentent en général un effet photoélectrique dont le caractère est assez complexe et variable d'un cas à l'autre. Nous ne considérerons ici que l'effet photoélectrique fondamental, correspondant à l'absorption fondamentale. On peut évidemment observer aussi un effet photoélectrique correspondant à une absorption aux centres d'impuretés ou de déformation du réseau ou encore à une absorption avec formation d'excitons Mais celui-ci sera une perturbation de l'effet photoélectrique fondamental.

Nous ne considérerons donc que la bande de valence et la bande de conduction, séparés par un intervalle d'énergie ΔE et une affinité électronique W pour les électrons de la bande de conduction (*fig.* 1A). Cette théorie s'appliquera donc aussi bien aux isolants qu'aux semiconducteurs, mais le seuil photoélectrique des isolants sera reculé plus loin dans l'ultraviolet.

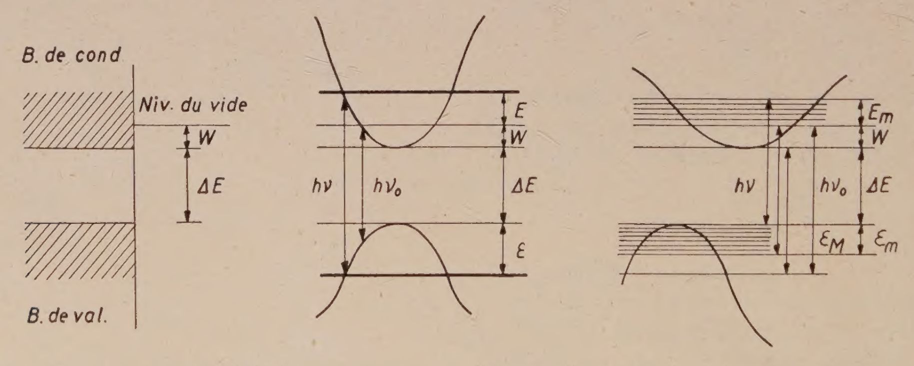


Fig. 1. — A : Modèle. — B : Transitions directes. — C. Transitions indirectes.

Théorie de l'effet photoélectrique fondamental. — *a*) La formule de Apker, Taft et Dickey. — Apker, Taft et Dickey [4] sont les seuls auteurs qui ont proposé une formule générale pour la distribution spectrale de l'effet photoélectrique fondamental des semiconducteurs. Ils utilisent le modèle suivant,

— La bande de valence correspond à un diagramme $\varepsilon(k)$ parabolique, tel que la distribution d'énergie de ces électrons soit donnée par

$$n(\varepsilon)\, f(\varepsilon, T) \sim \varepsilon^{1/2}$$

pour $kT < \Delta E$.

— On fait abstraction de toute règle de sélection en k. Des photons d'énergie $h\nu$ pourront donc exciter des électrons de la bande de valence de n'importe quelle énergie ε. Le seuil photoélectrique sera $h\nu_0 = \Delta E + W$ et l'énergie des photoélectrons émis sera comprise entre $E = 0$ et

$$E = E_m = h\nu - h\nu_0.$$

La probabilité de photoexcitation d'un électron de la bande de valence d'énergie ε par un photon d'énergie $h\nu$ n'est pas explicitée. On suppose simplement qu'elle peut s'écrire

$$s(\varepsilon, \nu) \sim q(\nu)\, \varepsilon^{m-5/2},$$

où $q(\nu)$ varie lentement.

— On suppose alors que la probabilité de sortie des électrons excités soit $p \sim E_m$. Ceci peut être rendu plausible par le raisonnement suivant : l'énergie cinétique de l'électron excité dans la bande de conduction est $\varepsilon = E + W$. Mais cet électron ne pourra sortir que si la composante normale de son énergie cinétique est supérieure à la hauteur de la barrière d'énergie à la surface W. En supposant donc que la réflexion de la surface soit nulle dans ce cas et qu'il n'y ait pas d'absorption des électrons sur leur parcours vers la surface, on aura pour la probabilité de sortie

$$p = (1/2)\,(1 - \sqrt{W/\varepsilon'}) \simeq E/4W$$

près du seuil photoélectrique où $0 \leqslant E \leqslant E_m$. Avec ces hypothèses, le courant photoélectrique sera finalement

$$i(\nu) = \int_0^{h\nu - h\nu_0} n(\varepsilon)\, f(\varepsilon, T)\, s(\varepsilon, \nu)\, p d\varepsilon \sim q(\nu)\, (h\nu - h\nu_0)^m$$

Ces auteurs reportent pour le Te et le Ge une expression de ce genre avec $m = 4$.

Ce modèle aboutit donc à une formule simple et apparamment assez générale. Mais en fait il ne pourra être valable que dans le cas des transitions indirectes, comme nous le montrerons plus loin. On sait par contre que l'absorption fondamentale des semiconducteurs et isolants est déterminée surtout par les transitions directes, verticales avec une règle de sélection très stricte : $\overline{k'} = \overline{k}$.

b) L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE FONDAMENTAL DANS LE CAS DES TRANSITIONS DIRECTES. — L'étude de l'absorption optique des solides [5] aboutit aux conclusions suivantes : parmi les transitions directes, c'est-à-dire sans intervention des vibrations du réseau, on peut distinguer les transitions verticales ($\overline{k'} = \overline{k}$) et les transitions obliques ($\overline{k'} = \overline{k} + \overline{G}$). Ces dernières résultent d'une réflection de Bragg des électrons sur le réseau, simultanée avec la photoexcitation. Les transitions verticales, donnent lieu à un coefficient d'absorption plus important. Mais dans les métaux (alcalins) seul les transitions obliques interviennent parce que les transitions verticales sont interdites. Cela n'est pas le cas pour les semiconducteurs et isolants où les transitions verticales sont prédominantes.

Dans les transitions directes, verticales l'énergie des électrons excités est bien déterminée. On a donc toute raison d'appliquer l'approximation monocinétique qui permet de calculer le courant photoélectrique pour un film d'épaisseur d, caractérisé par une profondeur d'émission des photoélectrons L. Comme pour le cas des métaux [2], on trouve :

$$i(\nu) = e\,\alpha\, gI_0\, pL(1 - e^{-d/L}) = M\,\alpha\, p$$

I_0 est l'intensité lumineuse incidente et gI_0 est l'intensité lumineuse dans le film, déterminée par les propriétés optiques classiques de la surface du film. g et L peuvent dépendre de la fréquence, donc M aussi. Mais il est probable que M varie lentement près du seuil photoélectrique et que αp donne le comportement caractéristique.

Le coefficient d'absorption α est donné par [5, 6]

$$\alpha(\nu) = (A/h\nu)\,(h\nu - \Delta E)^{1/2}$$

pour des transitions permises (par ex. : $s - p$) et

$$\alpha(\nu) = (B/h\nu)\,(h\nu - \Delta E)^{3/2}$$

pour des transitions non permises (par ex. : $s - s$).

Ce résultat peut être retrouvé très simplement puisque la probabilité de photoexcitation pour un électron d'énergie ε est $s(\varepsilon, \nu) \sim$ Cte ou ε et que $\alpha(\nu) \sim n(\varepsilon)\, s(\varepsilon, \nu)$ avec $n(\varepsilon) \sim \varepsilon^{1/2}$. Si de plus les sommets des paraboles $\varepsilon(k)$ correspondent à la même valeur de k (par ex. : *fig.* 1B) on a

$$\varepsilon \sim (h\nu - \Delta E).$$

Mais dans ce cas on a aussi $E \sim (h\nu - h\nu_0)$ et comme $p \sim E$ près du seuil photoélectrique, on aura dans cette région

$$i(\nu) \sim (h\nu - h\nu_0)\,(h\nu - \Delta E)^{1/2 \text{ ou } 3/2}.$$

Suivant que les deux paraboles $\varepsilon(k)$ sont tournées en sens opposés (*fig.* 1B) ou dans le même sens, on aura respectivement pour le seuil photoélectrique : $h\nu_0 = \Delta E + W(1 \pm \gamma)$ ou encore $h\nu_0 \simeq \Delta E + 2W$ et $h\nu_0 \simeq \Delta E$ puisque γ est le rapport des masses effectives.

Donc dans le dernier cas seulement on peut avoir

$$i(\nu) \sim (h\nu - \Delta E)^{3/2 \text{ ou } 5/2}.$$

Notons que dans le cas de films minces ($d \ll L$) on aurait encore pour l'efficience quantique par photon absorbé, comme dans le cas des métaux

$Y \sim \alpha p$. L'efficience photoélectrique des semiconducteurs du type Cs_3Sb n'est pas seulement plus grande que celle des métaux à cause de la plus grande valeur de α, mais aussi à cause de l'augmentation plus rapide de p, suite à la valeur plus petite de l'affinité électronique W. Pour les métaux $W \simeq 5$ à 15 eV et pour les semiconducteurs $W \simeq 1$ eV (*fig.* 3).

L'analyse de l'effet photoélectrique fondamental dans le cas des transitions directes, verticales, peut se faire de la façon suivante :

1. Comparer le spectre d'absorption déterminé expérimentalement, avec une des formules théoriques de $\alpha(\nu)$.

2. Déterminer ΔE et $h\nu_0$ par le spectre d'absorption et par le spectre de l'efficience photoélectrique. Ceci permettra de calculer

$$p = \frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{\frac{h\nu_0 - \Delta E}{h\nu - \Delta E}}\right)$$

si les sommets des paraboles $\varepsilon(k)$ correspondent à la même valeur de k.

3. Diviser $i(\nu)$ par le produit αp pour obtenir une idée de la variation de $M(\nu)$ et de $L(\nu)$.

c) L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE FONDAMENTAL DANS LE CAS DES TRANSITIONS INDIRECTES. — Les transitions indirectes impliquent une émission ou absorption simultanée d'un phonon d'énergie E_p avec l'absorption du photon d'énergie $h\nu$. Les transitions indirectes constituent donc un effet du second ordre et sont moins probables que les transitions directes.

Les transitions indirectes ne sont à considérer que dans le cas où les transitions directes sont interdites. Ce sera le cas par exemple quand les paraboles $\varepsilon(k)$ n'ont pas leur sommets pour une même valeur de k (*fig.* 1C) et que le seuil d'absorption par transitions directes verticales est supérieur à ΔE. Mais pour retomber sur le modèle de Apker, Taft et Dickey, il faut encore que la bande de conduction (ou la bande de valence) présente un diagramme $\varepsilon(k)$ assez aplati, c'est-à-dire ne couvrant qu'un intervalle d'énergie de l'ordre de $2\,kT$. C'est le cas du Ge auquel la théorie des transitions indirectes peut très bien s'appliquer. En effet, l'énergie de l'électron excité sera

$$\varepsilon' = h\nu - \Delta E - \varepsilon \pm E_p$$

respectivement suivant qu'il y a eu absorption ou émission d'un phonon.

Comme pratiquement $E_p \leqslant kT$, on couvrira une bande d'énergie de l'ordre de $2\,kT$.

Admettons donc que $h\nu - \Delta E \simeq kT$. Alors l'énergie des électrons qui peuvent être excités par des photons $h\nu$ sera $0 \leqslant \varepsilon \leqslant \varepsilon_M = h\nu - \Delta E \pm E_p$ et l'énergie des électrons qui peuvent être excités et émis sera $0 \leqslant \varepsilon \leqslant \varepsilon_m = h\nu - h\nu_0$ avec

$$h\nu_0 = \Delta E + W,$$

comme seuil photoélectrique.

Le coefficient d'absorption a été calculé par Bardeen [6] et peut être calculé plus simplement d'après [7]

$$\alpha(\nu) = \int_0^{\varepsilon_M} n(\varepsilon)\, s(\varepsilon, \nu)\, n(\varepsilon')\, d\varepsilon \sim (h\nu - \Delta E \pm E_p)^{2 \text{ ou } 3}.$$

Si nous utilisons encore l'approximation monocinétique pour le calcul du courant photoélectrique, nous devons faire intervenir par contre un autre coefficient d'absorption, correspondant aux électrons qui peuvent être émis :

$i(\nu) = M\alpha' p$ avec

$$\alpha'(\nu) = \int_0^{\varepsilon_m} n(\varepsilon)\, s(\varepsilon, \nu)\, n(\varepsilon')\, d\varepsilon \sim (h\nu - h\nu_0)^{2 \text{ ou } 3}.$$

Ici nous utilisons pour la probabilité de photoexcitation $s(\varepsilon, \nu) \sim$ Cte ou ε. Pour la probabilité de sortie nous admettons encore $p \sim E_m$. Ainsi nous obtenons près du seuil photoélectrique

$$i(\nu) \sim (h\nu - h\nu_0)^{3 \text{ ou } 4}.$$

C'est le résultat trouvé par Apker, Taft et Dickey pour le Te et le Ge avec l'exposant 4, ce qui indiquerait que la transition a eu lieu entre états de même parité.

Données expérimentales sur le Cs_3Sb. — Les photocathodes au Cs-Sb, dont l'efficience pour la lumière visible est de 20 à 30 %, furent découvertes par Görlich [8]. Il est bien démontré actuellement que ce composé intermétallique forme un semiconducteur pouvant être du type p, puisqu'il se forme un composé Cs_3Sb avec éventuellement un léger excès de Cs [9, 10].

Nous avons choisi le Cs_3Sb parce que son effet photoélectrique, étudié par beaucoup d'auteurs à cause de sa grandeur et de son importance pratique, est probablement un des meilleurs cas d'effet photoélectrique fondamental connu actuellement. En rassemblant les résultats expérimentaux on observe de grandes divergences qui montrent combien il est dangereux de se baser uniquement sur des résultats partiels d'un seul auteur, à cause de la densité variable des centres d'impuretés ou des imperfections dans les différents échantillons. On en tirera aussi quelques orientations nouvelles pour d'autres recherches expérimentales.

a) LE SPECTRE D'ABSORPTION OPTIQUE. — Le spectre d'absorption optique du Cs_3Sb a été mesuré par Burton [3] ; Wallis [9], Spicer, Morgulis ainsi que par Taft et Philipp [11] dont les résultats sont comparés à la figure 2. La courbe en trait plein correspond à la formule théorique pour des transitions directes, verticales, non permises :

$$\alpha(\nu) = (1{,}1\ 10^6/h\nu)\,(h\nu - 1{,}6)^{3/2}\ \text{cm}^{-1}.$$

Il en résulte que $\Delta E = 1{,}6$ eV. L'écart pour

$h\nu > 3{,}5$ eV est dû à l'approximation de la formule qui n'est valable que près du seuil photoélectrique. Les autres déviations peuvent être considérées comme des perturbations de l'absorption fondamentale.

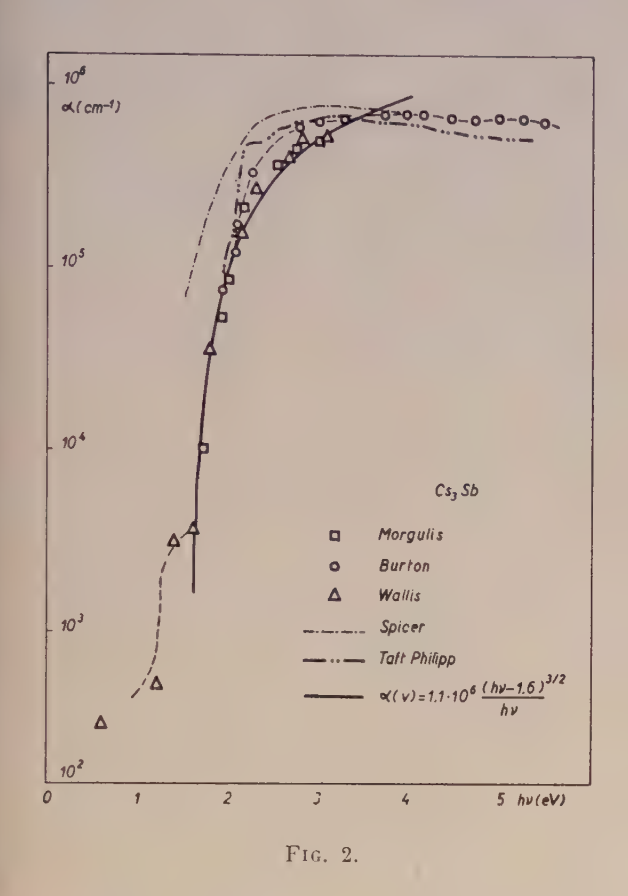


Fig. 2.

Fig. 3.

1. Pour $h\nu < 1{,}6$ eV on observe encore une faible absorption, que Wallis [11] a interprété comme un effet des centres d'impuretés dont la densité serait d'environ 10^{19} cm^{-3}.

2. Autour de $h\nu = 2{,}4$ eV, on observe dans certains cas une autre absorption supplémentaire qui se compose probablement de plusieurs maxima devenant plus visibles à basse température. Il s'agit soit d'une absorption avec formation d'excitons, soit d'une absorption aux centres d'impuretés, soit encore d'une superposition des deux.

b) La distribution spectrale de l'efficience photoélectrique. — Les résultats expérimentaux de Burton [11] ; Zworykin et Ramberg [9], Sakata ; Miyazawa ; Apker, Taft et Dickey ; Eckart [12] ainsi que Spicer ; Taft et Philipp [11] sont comparés à la figure 3. Le parallélisme entre ces courbes et celles de l'absorption optique est évident. Il s'agit bien d'un effet photoélectrique fondamental auquel se superposent encore des effets secondaires.

1. Pour $h\nu = 1{,}2$ eV Taft et Philipp [11] trouvent un maximum à 90 °K, si la surface a été irradiée préalablement par une lumière de fréquence plus élevée. Mais ce maximum s'efface progressivement sous l'action d'une irradiation à 1,2 eV.

Schaetti et Baumgartner [13] ont fait une observation semblable. Ils ont montré aussi que le courant noir augmente progressivement avec la durée d'exposition préliminaire, mais qu'une saturation est atteinte après 5 s pour le Cs_3Sb et après 120 s pour le Li_3Sb. Le courant noir dépend également de la fréquence utilisée dans l'illumination préliminaire et présente une dépendance spectrale semblable à la distribution spectrale de l'effet photoélectrique, avec une influence plus prononcée de la lumière rouge ($1{,}6$ eV $\leqslant h\nu \leqslant 2{,}5$ eV).

Nous en proposons l'interprétation suivante : l'excitation préliminaire a pour effet d'exciter des électrons de la bande de valence à la bande de conduction. Mais un certain nombre de ces électrons sera retenu dans la bande de conduction ou sera capté par les centres d'impuretés ou retourne à la bande de valence — cela à cause des diffusions sur le parcours vers la surface et à cause de la barrière de potentiel *W* à la surface. Le courant noir sera produit par une émission thermique des électrons qui ne sont pas encore retournés à la

bande de valence. Le seuil de cet effet doit être évidemment $\Delta E = 1{,}6$ eV. L'émission photoélectrique pour $h\nu = 1{,}2$ eV sera due à l'excitation d'électrons captés dans les centres d'impuretés.

2. Vers $h\nu = 2{,}4$ eV on observe un autre maximum secondaire, qui se détache d'avantage à 90 °K et se localise alors à 2,2 eV d'après les mesures de Shalabutov et Maslenikova [15] ; Taft et Philipp [11] ainsi que Miyazawa [12]. La courbe en trait plein semble bien représenter l'effet photoélectrique fondamental.

La figure 4 donne la comparaison des courbes d'efficience photoélectrique pour différents composés du type M_3Sb, mesurées par Spicer [11]. On remarque l'analogie entre les courbes du Cs_3Sb et Rb_3Sb d'une part et des courbes du K_3Sb et Na_3Sb d'autre part.

Sommer [10] a montré que les deux derniers sont normalement du type *n* et que les deux premiers sont normalement du type *p*. On peut donc admettre une émission d'impuretés *p* autour de 2,4 eV pour les deux premiers, absente pour les deux derniers. Ce point de vue est confirmé par l'apparition de nouveaux maxima dans la même région du spectre d'absorption après addition de K au K_3Sb et de Na au Na_3Sb si on admet qu'on produit ainsi des centres d'impuretés *p*. Il semble donc bien s'agir d'un effet d'impuretés. Mais l'existence de plusieurs maxima dans le spectre d'absorption du K_3Sb, observés par Spicer ainsi que par Taft et Philipp [11] pourrait indiquer qu'il existe aussi un effet d'excitons, plus visible dans le K_3Sb et le Na_3Sb qui ne sont pas du type *p*. Il serait intéressant de vérifier si l'émission photoélectrique autour de $h\nu = 2{,}4$ eV dépend également de l'excitation préliminaire, puisqu'elle devient plus prononcée à basse température et puisqu'elle n'est pas également importante chez différents auteurs.

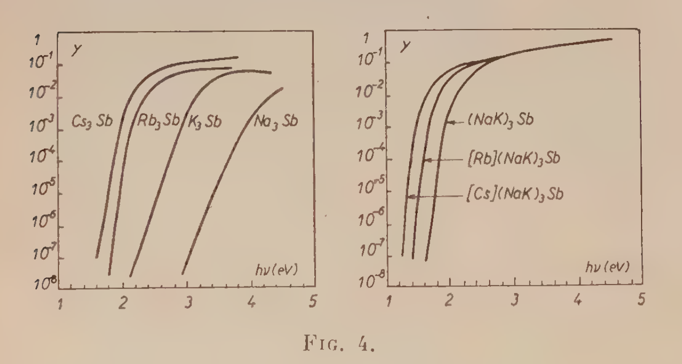


Fig. 4.

Remarquons la grande efficience photoélectrique des photocathodes multialcalines (*fig.* 4) et la diminution du travail d'extraction photoélectrique par l'absorption de Rb et de Cs sur la surface. Ce sont les meilleures photocathodes connues actuellement.

L'influence de la température sur l'efficience photoélectrique du Cs_3Sb a déjà fait l'objet d'une autre étude [14]. Notons ici simplement que le déplacement de 3 à 5 10^{-4} eV/degré du seuil photoélectrique $h\nu_0$ avec la température s'explique directement par le fait que

$$\Delta E = \Delta E_0 - cT \quad \text{avec} \quad c \simeq 10^{-4} \text{ eV/degré.}$$

Il n'est donc pas nécessaire de faire appel à un effet d'impuretés, comme Spicer [11] l'a supposé.

c) La distribution d'énergie des photoélectrons. — Les déterminations expérimentales de la distribution d'énergie des photoélectrons du Cs_3Sb pour différentes valeurs de $h\nu$ sont rassemblées à la

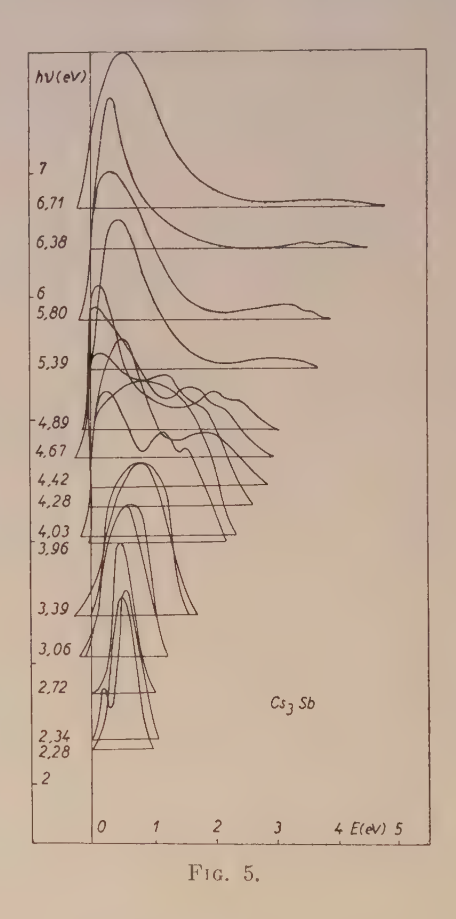


Fig. 5.

figure 5. Ces courbes sont normalisées par leur maximum et déplacées suivant la valeur de $h\nu$. Ces mesures ont été faites par Sakata ; Miyazawa ; Apker, Taft, Dickey [12] ; Shalabutov, Maslenikova ; Pyatnitskii ; Zheludeva, Akhmatova [15] ; Taft, Philipp [11].

Le trait essentiel de ces courbes est l'apparition d'un second maximum à basse énergie pour $h\nu \geqslant 4$ eV. Comme dans le cas analogue des métaux [1, 2] on peut considérer ces électrons lents comme des électrons secondaires. Il faut alors que $h\nu \geqslant \Phi_{ES} = 2(\Delta E_{Th} + W)$.

Notons que Apker, Taft et Dickey ainsi que Taft et Philipp [12] observent plusieurs maxima dans les courbes de distribution d'énergie pour $h\nu > 4$ eV. Shalabutov et Maslenikova [15] par contre observent un maximum secondaire pour $h\nu = 2{,}34$ eV.

d) Les effets thermiques. — Le Cs_3Sb est un semiconducteur de type *p*. Cela résulte des mesures du coefficient de température de la force thermoélectromotrice et de la mesure de l'effet Hall par Sakata [16]. Cela est confirmé aussi par les mesures de l'influence de la composition stéchiométrique sur la conductibilité électrique par Sommer et Borzyak [10].

La dépendance de la température de la conductibilité électrique, permet de déterminer l'énergie d'activation E_A des centres *p*, ou éventuellement l'énergie ΔE_{Th} dans le cas de conductibilité intrinsèque. Les résultats de Lukjanov, Mosover ; Juze, Mochan, Ribken ; Schaetti, Baumgartner ; Suhrman, Kangro ; Harper, Choyke [17] ; Morgulis [11] ; Sakata [12, 16] ; Wallis [10] sont reportés sur la figure 6 en fonction de l'intervalle de température dans lequel ils ont été mesurés.

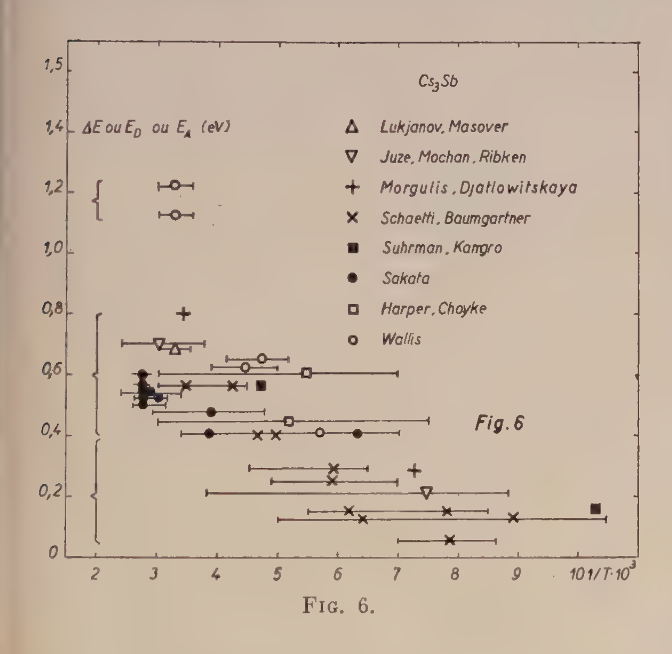


Fig. 6.

On observe :

1. Une grande fluctuation dans les valeurs de l'énergie d'activation. Ceci pourrait être (au moins partiellement) expliqué par une variation de la densité N_A des centres d'impuretés. Pearson et Bardeen [18] ont montré en effet que l'énergie d'activation des centres *n* et *p* diminue d'environ 0,1 eV quand N_A augmente d'un facteur 100, par suite de l'interaction entre ces centres. Les cassures des courbes $\ln \sigma/T^r$ ($r = 3/4$ ou $3/2$) en fonction de $1/T$ permettent de distinguer trois groupes d'énergies d'activation : $\sim 0{,}2$ eV $\sim 0{,}6$ eV, $\sim 1{,}2$ eV.

On constate aussi :

2. Une grande fluctuation de la valeur de la conductibilité électrique, qui provient d'une fluctuation des valeurs de la densité N_A des centres d'impuretés ou de la mobilité des charges *p* ou *n* (ce qui peut encore être au moins en partie une suite des variations de N_A). La dépendance de la conductibilité électrique de la densité N_A semble bien résulter des mesures de Sommer ; Borzyak ; Wallis [9, 10].

De la mesure de Widmaier et Engstrom [19] on peut conclure que la conductibilité électrique est largement influencée par l'illumination de la photocathode Cs_3Sb. Il s'agit probablement encore d'électrons captés dans ces centres *p* ou au fond de la bande de conduction, suite à l'illumination.

Le travail d'extraction thermoionique Φ mesuré par Wright [20] ; Sakata ; Eckart [12] ; Wallis [9] et d'autres [15], [16], [17] fluctue également entre 1,10 eV et 1,50 eV, mais chaque mesure donne une valeur unique de Φ_{Th}. Pour un semiconducteur de type *p* on aurait $\Phi_{Th} = \Delta E_{Th} + W = E/2$ et pour un semiconducteur intrinsèque

$$\Phi_{Th} = (\Delta E_{Th} + W)/2.$$

Les fluctuations des valeurs Φ_{Th} proviennent probablement encore des fluctuations de N_A puisque Sakata trouve une augmentation de Φ_{Th} quand E_A diminue et que Pyatnitskii [15] trouve $\Phi_{Th} \simeq 1{,}15$ eV pour un rapport « optimum » de Cs/Sb.

La confrontation de ces résultats expérimentaux montre surtout l'insuffisance des données actuelles pour une compréhension complète des phénomènes électroniques dans le Cs_3Sb. Il serait particulièrement intéressant d'analyser l'influence de la densité N_A et de l'illumination et de réaliser des mesures simultanées des différentes grandeurs mesurables.

Modèles électroniques proposés pour le Cs_3Sb. — *a*) Le modèle de Wright et Burton. — Le modèle proposé par Wright [20] et Burton [11] est schématisé à la figure 7*a*. On mesure $h\nu_0$, ΔE, Φ_{Th}, E_A et on suppose $\Delta E = \Delta E_{Th}$. Les désaccords éventuels entre ces valeurs sont expliqués par un réarrangement après photoexcitation (Wright). L'apparition des électrons lents pour $h\nu > 4$ eV est expliquée comme une émission secondaire par Apker, Taft et Dickey [12].

b) Le modèle de Miyazawa. — Le modèle de Miyazawa [12] fait intervenir une double branche pour le diagramme $\varepsilon(k)$ de la bande de valence, comme l'indique la figure 7*b*. La photoexcitation se fait par transitions verticales. Il y aurait un

effet photoélectrique de surface avec le seuil $h\nu_0$ et un effet photoélectrique de volume avec le seuil $h\nu'_0$. Les électrons lents pour $h\nu > 4$ eV seraient dus à un second effet photoélectrique de volume avec le seuil $h\nu''_0$ pour la deuxième branche de la bande de valence.

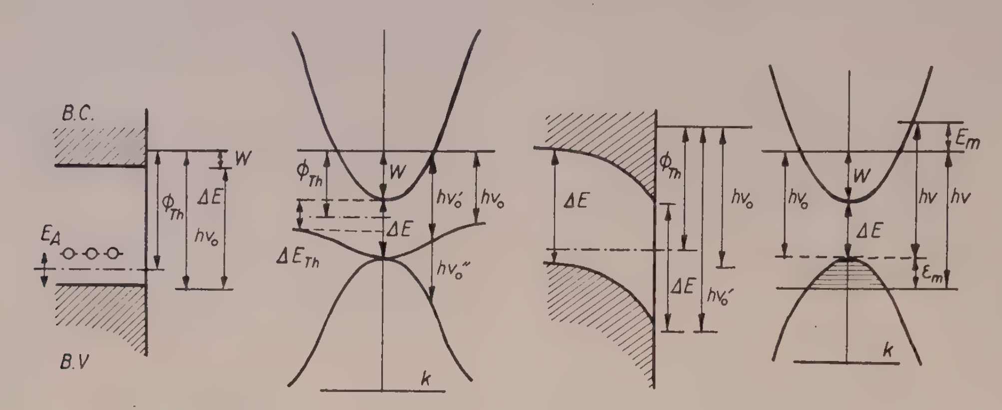


FIG. 7. — *a*. Wright-Burton. — *b*. Miyazawa. — *c*. Piatniskii. — *d*. Apker, Taft, Dickey-Spicer.

c) LE MODÈLE DE PYATNITSKII [15] propose une courbure vers le bas de la bande de conduction et de la bande de valence suite aux états de surface du semiconducteur pur et aux atomes Cs absorbés à la surface dans le semiconducteur de type *p*. La zone de distorsion s'étendrait à environ 1 000 A. Le seuil photoélectrique est $h\nu_0$ mais l'effet photoélectrique ne devient important qu'à partir de $h\nu'$ puisque la profondeur de sortie des électrons $L \simeq 250$ Å, d'après Burton [11].

d) LE MODÈLE DE APKER, TAFT et DICKEY ET LE MODÈLE DE SPICER. — Le modèle de Apker, Taft et Dickey [4] basé en fait sur l'hypothèse de transitions indirectes, a déjà été discuté dans la théorie générale.

Le modèle de Spicer [11] est basé sur les mêmes hypothèses, mais introduit de plus l'influence de la profondeur d'émission photoélectrique

$$L = 1/\alpha + \beta,$$

déterminée par la profondeur de pénétration de la lumière ($1/\alpha$) et par la profondeur de sortie des photoélectrons ($1/\beta$). Sa formule correspond à une approximation monocinétique dans un film d'épaisseur infinie :

$$i(\nu) = e\alpha' G I_0 L.$$

Mais il introduit alors les simplifications suivantes :

$$L = 1/\alpha + \beta \simeq 1/\alpha' + \text{Cte}$$

$$\alpha' \sim (h\nu - h\nu_0)^{3/2} \text{ au lieu de } \alpha' \sim (h\nu - h\nu_0)^{2 \text{ ou } 3}$$

et $G \simeq$ Cte au lieu de $G = gp$ où $p \sim E$ varie rapidement avec $h\nu$. Ceci explique que Spicer ne pouvait comparer sa théorie avec les résultats expérimentaux pour le K_3Sb et Na_3Sb et que la comparaison n'est possible pour le Cs_3Sb, le Rb_3Sb et le $(NaK)_3Sb$, que si on admet un effet photoélectrique d'impuretés, très important près du seuil.

La diminution de l'efficience avec la température dans cette région n'est d'ailleurs pas une preuve d'un effet photoélectrique d'impuretés, puisque la dépendance de la température de ΔE en donne une explication suffisante.

On peut proposer d'autres modèles encore. Nottingham [21] propose par exemple une jonction *p-n* à la surface. Si nous admettons un modèle semblable à celui de Wright et Burton en supposant pour la bande de conduction un diagramme $\varepsilon(k)$ parabolique et en portant l'énergie E_m, en tenant compte de l'énergie $h\nu$ correspondante, on peut estimer la forme du diagramme $\varepsilon(k)$ pour la bande de valence. Ce procédé montre que la bande de valence n'a pas de branche fortement remontante, comme le suppose Miyazawa.

L'effet photoélectrique fondamental et la profondeur d'émission du Cs_3Sb. — Sakata [12] a décrit la distribution spectrale de l'efficence Y pour l'effet photoélectrique fondamental par la formule

$$Y = 3{,}5\ 10^{-2}(h\nu - 1{,}7)^3$$

qui correspondrait à des transitions indirectes permises. Mais comme la courbe de l'absorption fondamentale coïncide mal avec les formules de l'absorption par transitions indirectes, mais bien avec les formules de l'absorption par transitions directes, verticales, non permises, nous admettrons celles-ci, d'autant plus que la courbe Y peut être influencée par une dépendance de la fréquence de la profondeur d'émission L. et que l'intervalle spectral

est trop large pour admettre des transitions indirectes.

Nous connaissons $\Delta E \simeq 1{,}6$ eV et $h\nu_0 \simeq 1{,}8$ eV, ce qui permet de calculer p en supposant que les courbes $\varepsilon(k)$ de la bande de conduction et de la bande de valence ont leurs maxima pour la même valeur de k. p représente l'efficience maximum à laquelle on peut s'attendre et détermine en fait les ordres de grandeur (*fig.* 3 et 8). α est connu également (*fig.* 2). L'efficience photoélectrique est

$$Y = i/eI_0 = \alpha p g L(1 - e^{-d/L})$$

ou simplement $Y = \alpha p g L$ si $d \gg L$ ou $Y = \alpha p g d$ si $d \ll L$. Pour des films très minces on aurait donc $Y \sim \alpha p$. La distribution spectrale de Y mesurée expérimentalement s'écarte de αp et permet d'estimer la dépendance de la fréquence de gL et donc de L, si on suppose des films épais (*fig.* 8).

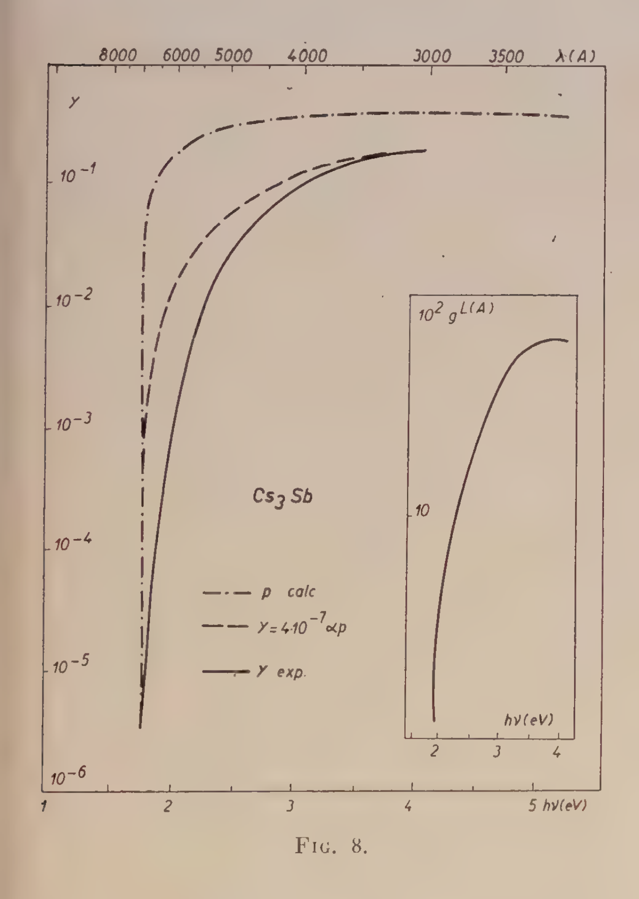


Fig. 8.

On trouve que $L \simeq 1$ Å près du seuil photoélectrique et que $L \simeq 10^2$ Å plus loin du seuil. Comme la profondeur de pénétration de la lumière est $1/\alpha \simeq 10^3$ a 10^4 Å et varie en sens contraire, la variation de L est bien un effet des diffusions des électrons dans leur mouvement vers la surface. Dans les métaux, la profondeur d'émission L varie en sens contraire : $L \simeq 10^3$ Å près du seuil et $L \simeq 1$ Å plus loin [1, 2]. Mais dans les métaux la profondeur d'émission est déterminée par la diffusion (interaction individuelle) de l'électron excité avec les autres électrons de la bande de conduction ou par une excitation d'ondes de plasma (interaction collective) pour des énergies plus élevées. Dans les semiconducteurs et isolants les interactions électron-électron ne sont possibles que pour $h\nu \geqslant 2\,\Delta E_{Th}$.

Pour $h\nu < 2\,\Delta E_{Th}$ seul les diffusions de l'électron excité avec des phonons ou avec les centres d'impuretés sont possibles. Mais la diffusion par phonons ne change pratiquement pas l'énergie des électrons et le libre parcours moyen est indépendant de son énergie [7]. Par contre, la diffusion par les centres d'impuretés est une diffusion coulombienne, pour laquelle le libre parcours moyen croît fortement quand l'énergie augmente, puisque $d\sigma \sim dQ/Q^2\,E$ si E est l'énergie de l'électron et Q sa perte d'énergie. Comme les faibles pertes d'énergie sont les plus probables, les photoélectrons subiront un grand nombre de diffusions, avant de ne plus pouvoir sortir du solide. Notons que les électrons très lents peuvent aussi être capturés dans les centres d'impuretés.

Pour $h\nu \geqslant 2\,\Delta E_{Th}$ des électrons secondaires peuvent être excités de la bande de valence à la bande de conduction et pour

$$h\nu \geqslant 2(\Delta E_{Th} + W) = \Phi_{ES}$$

on pourra observer une émission secondaire. La moitié des électrons lents observés pour $h\nu > 4$ eV dans le Cs_3Sb seront des électrons secondaires. L'émission secondaire explique aussi pourquoi $Y \simeq$ Cte pour $h\nu > 4$ eV, bien que $\alpha p \simeq$ Cte et que L diminue, comme dans le cas des métaux. L'excitation de plasmons demandera sans doute une énergie beaucoup plus élevée ($h\nu > 14$ eV).

Quant à la dépendance de la température de l'efficience photoélectrique, on remarque que près du seuil $Y \simeq a(h\nu - h\nu_0)^r$ et que

$$h\nu \sim \Delta E = \Delta E - cT,$$

dont il résulte un coefficient de température $K = dY/dT$ positif et tendant vers l'infini si $h\nu$ tend vers $h\nu_0$. Par contre pour $h\nu > 4$ eV, l'émission secondaire devient prédominante et celle-ci a un coefficient de température négatif [14].

Nous remercions M. le Professeur de Hemptinne pour l'intérêt qu'il a pris à ce travail.

Manuscrit reçu le 10 février 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Mayer, Thomas et Methfessel, *Z. Physik*, 1957, **147**, 395, 419, 442.
[2] Meessen, *J. Physique Rad.*, 1961, **22**, 308.
[3] Burton, *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 231, 5311.
[4] Apker, Taft et Dickey, *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1462.
[5] Meessen, *J. Physique Rad.*, 1961, **22**, 135.
[6] Bardeen, Blatt et Hall, Proc. Photoconductivity Conf., 1954.
[7] Smith, Semiconductors, 1959.
[8] Goerlich, *Z. Physik*, 1936, **101**, 335.
[9] Chlebnikov et Saizew, *J. Tech. Physics*, 1939, **9**, 44. Sommer, *Proc. Phys. Soc.*, 1943, **55**, 145. Veith, *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 507. Zworykin et Ramberg, Photoelectricity and its Applic., 1950. Miyazawa et All, *J. Phys. Soc.*, Japan, 1952, **7**, 647. Jack et Wachtel, *Proc. Roy. Soc.*, 1957, A **239**, 46. Wallis, *Ann. Physique*, 1956, **17**, 401.
[10] Sommer, *J. Appl. Physics*, 1958, **29**, 1568. Borjak, *J. Tech. Physics*, 1950, **20**, 923.
[11] Morgulis et All., *Ivest. Akad. Nauk.*, U. S. S. R., 1948, **12**, 126. Spicer, *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 114. Taft et Philipp, *Phys. Rev.*, 1959, **115**, 153.
[12] Sakata, *J. Phys. Soc.*, Japan, 1953, **8**, 723. Eckart, *Ann. Physik*, 1956, **19**, 133. Miyazawa, *J. Phys. Soc.*, Japan, 1953, **8**, 169. Apker, Taft et Dickey, *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 78.
[13] Schaetti et Baumgartner, *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 605 ; 1953, **26**, 380.
[14] Lontie et Meessen, *Ann. Soc. Sc.*, Bruxelles, 1959, **73**, 390.
[15] Pyatnitskii, *Rad. Eng. Electro.*, 1957, **2**, 6, 57. Shalabutov et Maslenikova, *J. Tech. Physics*, 1956, **26**, 1166. Zheludeva et Akhmatova, *Rad. Eng. Electr.*, 1958, **3**, 400.
[16] Sakata, *J. Phys. Soc.*, Japan, 1953, **8**, 125 A, 793 A ; 1954, **9**, 1030.
[17] Lukjanov et Mosover, *J. Tech. Physics*, 1939, **9**, 808. Juze, Mochan et Ribken, *J. Tech. Physics*, 1948, **18**, 1494. Schaetti, et Baumgartner, *Helv. Phys. Acta*, 1951, **24**, 614. Suhrmann et Kangro, *Naturw.*, 1953, **40**, 137. Harper et Choyke, *J. Appl. Physics*, 1956, **27**, 1358.
[18] Pearson et Bardeen, *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 865.
[19] Widmaier, Engstrom, Rep. 14. An. Conf. Phys. Electr., MIT 82, 1954.
[20] Wright, Semiconductors, 1950.
[21] Nottingham, Communication privée après la rédaction.

LE SPECTRE D'ÉMISSION D'UN ÉLECTRON NON-RELATIVISTE LIBRE DANS UN GAZ IONISÉ

Par Louis GALATRY,
Laboratoire des Hautes Pressions, C. N. R. S., Bellevue (Seine-et-Oise).

Résumé. — Une théorie spectrale par intégrale de Fourier du rayonnement d'un électron libre est proposée. Après des applications au rayonnement de freinage et au rayonnement cyclotronique, on examine le cas où les effets de friction dynamique et d'enroulement des trajectoires autour des lignes de force du champ magnétique ne sont plus négligeables.

Abstract. — A Fourier integral theory of the radiation by a free electron is proposed. After applications to bremsstrahlung and cyclotron radiation, cases are studied where dynamic friction effects and rotation around the lines of force of a magnetic field are not negligible.

Introduction. — On connaît deux modes principaux d'émission par un électron libre, l'un est dû au freinage de l'électron au moment d'un choc avec des ions ou des atomes neutres ; l'autre se manifeste lorsque, dans un champ magnétique $\boldsymbol{H}$, l'électron est accéléré par la force e/c ($\boldsymbol{v} \times \boldsymbol{H}$) ($\boldsymbol{v}$ est la vitesse de l'électron). Le premier type d'émission (par transition hyperbolique) a été étudié en détail dans le cas où l'électron émetteur ne subit que des chocs isolés. Denisse [1], puis Oster [2] (*) ont donné des expressions de la répartition spectrale émise dans le domaine des grandes longueurs d'onde.

Dans le premier cas le traitement consiste à analyser le rayonnement émis lorsqu'un électron décrit,

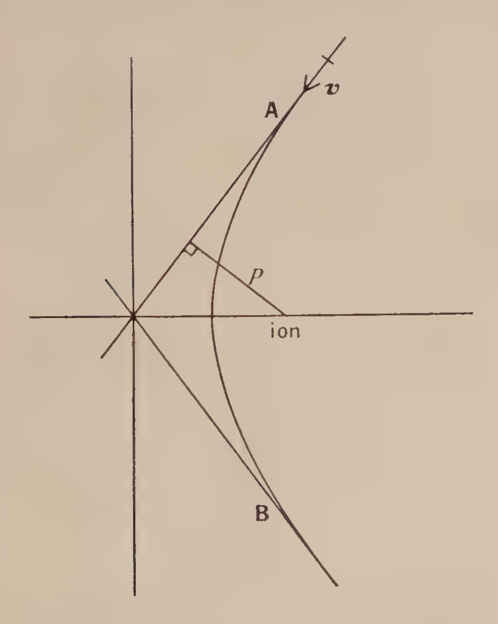


Fig. 1. — Trajectoire d'un électron dans le champ d'un ion.

(*) On trouvera dans la référence [2] une bibliographie plus détaillée.

par rapport à un ion supposé infiniment lourd, une trajectoire hyperbolique (*fig.* 1) ; si on suppose que, lors d'un tel choc, tout le processus d'émission est concentré dans le temps p/v que passe l'électron au voisinage de l'ion déflecteur et si, de plus, la statistique sur les paramètres de choc p est faite en supposant qu'au delà de $p = p_m$ indépendant de v, le choc n'est plus optiquement actif, on obtient alors une distribution spectrale essentiellement constante dans les grandes longueurs d'onde. Denisse [1] a discuté la valeur de p_m suivant les conditions physiques et Oster [2] a examiné les modifications à apporter à l'intensité du fond continu quand le processus d'émission n'a plus une durée courte devant la période du rayonnement émis.

Le second type d'émission envisagé plus haut fournit, dans l'approximation non relativiste, une raie spectrale à la fréquence angulaire $\omega_c = eH/mc$ qui est la fréquence de giration de l'électron autour des lignes de force du champ uniforme $\boldsymbol{H}$ [3]. Lorsque l'électron est isolé, cette raie possède la seule largeur naturelle. Si, par contre, on fait intervenir pour calculer son profil l'action perturbatrice des autres particules du plasma, on obtient une largeur supplémentaire. Pour des actions interparticulaires schématisées par des chocs de durée infiniment courte qui provoquent seulement de brusques changements dans les caractéristiques de la trajectoire hélicoïdale de l'électron, la raie possède un profil de Lorentz de demi largeur égale à la fréquence moyenne des chocs τ_L^{-1}. De plus l'anisotropie du mouvement des électrons entraîne une variation de la forme de la raie suivant l'angle d'observation par rapport à la direction du champ magnétique [4].

Les deux effets présentés ci-dessus seront traités ici en utilisant la théorie de l'intégrale de Fourier des raies spectrales qui est d'usage courant pour l'étude d'un électron lié et qui sera étendue au cas

d'un électron libre (première partie). Dans la seconde partie, on examine comment cette formulation permet d'aborder l'étude du spectre d'un électron libre dans un plasma dense, éventuellement soumis à l'action d'un champ magnétique uniforme.

PREMIÈRE PARTIE

Théorie classique de l'intégrale de Fourier pour un électron libre ; applications simples. — *a*) L'énergie rayonnée par unité de temps dans l'intervalle de fréquence $\mathrm{d}\nu = \mathrm{d}(\omega/2\pi)$ par une charge $-e$ décrivant une trajectoire $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{r}(t)$ est donnée par [5] :

$$\mathrm{d}\varepsilon(\nu) = \varkappa \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \left| \int_{-T}^{+T} \mathrm{d}t\, e^{i\omega t}\, \ddot{\boldsymbol{r}}(t) \right|^2 \mathrm{d}\nu \qquad (1)$$

avec $\varkappa = 2e^2/3c^3$; $\ddot{\boldsymbol{r}}$ est le vecteur accélération de la particule, égal à $m^{-1}\,\boldsymbol{F}$, où $\boldsymbol{F}$ est la force s'exerçant sur elle à l'instant t et m sa masse.

Par transformation du carré du module en une intégrale double, on obtient à partir de (1) :

$$\mathrm{d}\varepsilon(\nu) = \frac{\varkappa}{m^2} \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \left\{ \int_{-T}^{+T} \mathrm{d}t \int_{-T}^{+T} \mathrm{d}t'\, \boldsymbol{F}(t)\,.\,\boldsymbol{F}(t')\, e^{i\omega(t'-t)} \right\} \mathrm{d}\nu. \qquad (2)$$

Dans la plupart des cas la force $\boldsymbol{F}$ possède un caractère purement aléatoire ; il est impossible de connaître sa forme analytique, donc de calculer les intégrales ci-dessus. Mais on peut remarquer que seul nous intéresse, pour comparaison avec l'expérience, le rayonnement moyen par rapport à toutes les trajectoires électroniques possibles entre $-T$ et $+T$. En notant cette moyenne par $< >$, la relation (2) nous donne :

$$< \mathrm{d}\varepsilon(\nu) > = \frac{\varkappa}{m^2} \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \left\{ \int_{-T}^{+T} \mathrm{d}t \int_{-T}^{+T} \mathrm{d}t' < \boldsymbol{F}(t)\,.\,\boldsymbol{F}(t') > e^{i\omega(t'-t)} \right\} \mathrm{d}\nu. \qquad (3)$$

Si l'on remarque qu'à cause du caractère aléatoire de la variation de $\boldsymbol{F}$, la quantité $< \boldsymbol{F}(t)\,.\,\boldsymbol{F}(t') >$ ne dépend que de $t' - t = \tau$ et non pas de t, il vient immédiatement, après intégration sur t :

$$\mathrm{d}P(\nu) = < \mathrm{d}\varepsilon(\nu) > = \frac{2\varkappa}{m^2} \mathcal{R} \int_0^\infty < \boldsymbol{F}(0)\,.\,\boldsymbol{F}(\tau) > e^{i\omega\tau}\, \mathrm{d}\tau\, \mathrm{d}\nu. \qquad (4)$$

La répartition spectrale est donc proportionnelle à la transformée de Fourier de la fonction

$$\varphi(\tau) = < \boldsymbol{F}(0)\,.\,\boldsymbol{F}(\tau) > \qquad (5)$$

dite fonction de corrélation de la force $\boldsymbol{F}$ (pour obtenir le coefficient d'émission par unité de volume, il faudra multiplier φ par le nombre n_e d'électrons par unité de volume).

La relation (4) n'est autre que la relation fondamentale de l'analyse harmonique généralisée (théorème de Wiener-Khintchine [6]), appliquée au cas où la fonction aléatoire à analyser $y(t)$ est le vecteur force subie par un électron au cours de son mouvement. La définition de la fonction « densité spectrale » :

$$G(f) = \lim_{T\to\infty} \frac{2}{T} |A(f)|^2 \,; \quad y(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}f A(f)\, e^{2\pi i f t}$$

qui, d'après la théorie est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation de $y(t)$, coïncide précisément, dans sa forme analytique, avec la relation (1) reliant l'intensité émise par unité de temps dans l'intervalle $\mathrm{d}\nu$ à l'accélération $\ddot{\boldsymbol{r}}$ de la particule émettrice.

b) L'exemple le plus simple d'application de la relation (4) est relatif à un électron tournant autour d'un noyau d'un mouvement circulaire et uniforme de vitesse angulaire ω_0. On le suppose de plus soumis dans son mouvement à des changements de phase brusques et aléatoires représentant l'influence des chocs avec les atomes perturbateurs. Soit $\Phi(t)$ la somme de ces déphasages au temps t. La force mise en jeu dans un tel mouvement est l'attraction du noyau $-Ze^2\,\boldsymbol{r}/r^3$ qui est égale, pour une trajectoire stable, à la force centrifuge $\omega_0^2\,\boldsymbol{r}$. On a donc

$$\boldsymbol{F}(0)\,.\,\boldsymbol{F}(\tau) = \omega_0^4 |\boldsymbol{r}|^2 \cos\left(\omega_0\tau + \Phi(\tau) - \Phi(0)\right).$$

D'où

$$< \boldsymbol{F}(0)\,.\,\boldsymbol{F}(\tau) > = \omega_0^4\, r^2 \left\{ \cos\omega_0\tau < \cos(\Phi(\tau) - \Phi(0)) > - \sin\omega_0\tau < \sin(\Phi(\tau) - \Phi(0)) > \right\}.$$

Sachant que, si les chocs détruisent complètement la corrélation de la phase, on a [7] :

$$< \cos(\Phi(\tau) - \Phi(0)) > = \exp(-\tau/\tau_L) \,;$$
$$< \sin(\Phi(\tau) - \Phi(0)) > = 0$$

il vient, après introduction de (5) dans (4) :

$$\mathrm{d}P(\nu) = \frac{2\varkappa}{m^2}\, \omega_0^4\, r^2 \left\{ \frac{\tau_L^{-1}}{(\omega - \omega_0)^2 + \tau_L^{-2}} + \frac{\tau_L^{-1}}{(\omega + \omega_0)^2 + \tau_L^{-2}} \right\} \mathrm{d}\nu \qquad (6)$$

qui est la forme spectrale de Lorentz bien connue.

c) La relation (4) permet également de retrouver l'expression du coefficient d'émission par transition hyperbolique. A cet effet on posera

$$\boldsymbol{F} = \sum_i \boldsymbol{F}_i$$

ou $\boldsymbol{F}_i$ est la force exercée sur l'électron par le i-ème ion ; d'où :

$$\varphi(\tau) = \sum_{i,j} < \boldsymbol{F}_i(0)\,.\,\boldsymbol{F}_j(\tau) >.$$

Si l'on néglige les corrélations entre les positions des différentes particules les termes où $i \neq j$ sont nuls et il reste :

$$\varphi(\tau) = n_i < \boldsymbol{F}_1(0) . \boldsymbol{F}_1(\tau) > \quad (7)$$

n_i étant le nombre d'ions par unité de volume. Or la force $\boldsymbol{F}_1$ ne s'exerce que pendant le temps passé par l'électron au voisinage de la particule 1. Donc, contrairement au cas de l'électron lié, le produit $\boldsymbol{F}_1(0) . \boldsymbol{F}_1(\tau)$ est ici nécessairement nul pour τ supérieur à une certaine valeur τ_m assimilable au temps nécessaire pour parcourir la portion AB de la trajectoire (*fig.* 1) ; soit $\tau_m \sim p/v$, où p est le paramètre de choc et v la vitesse relative à l'infini. Par ailleurs la partie réelle du facteur exp $(i\omega\tau)$ apparaissant dans la transformée de Fourier (4) a son premier zéro pour $\tau = \tau_M = \pi/2\omega$. Nous avons donc

$$\tau_m/\tau_M = (p/v)\ (2\omega/\pi) \sim p\omega(m/kT)^{1/2}.$$

Même dans le domaine des microondes ($\lambda \sim 0{,}1$ cm) et pour des valeurs raisonnables de T et de p (10^6 °K et 10^{-6} cm), on a $\tau_m/\tau_M \sim 6.10^{-2}$. La fonction $\varphi(\tau)$ est donc nulle pour des valeurs de τ dix fois plus faibles que le premier zéro de exp $(i\omega\tau)$; on approchera donc $\varphi(\tau)$ dans le calcul de la répartition spectrale, par une fonction de Dirac :

$$\varphi(\tau) = n_i\, \bar{a}\, \delta(\tau) \quad (8)$$

où $\bar{a}$ est l'aire totale de la fonction de corrélation exacte ; soit, en faisant en sens inverse les opérations qui conduisent à l'équation (3) :

$$\bar{a} = \overline{\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\tau \int_{-\infty}^{+\infty} F(t_0) . F(t_0 + \tau)\, \mathrm{d}t_0}.$$

La barre signifie une moyenne sur toutes les conditions initiales du choc (p, v). Le spectre d'émission devient alors :

$$\mathrm{d}P(\nu) = \frac{2\varkappa}{m^2} n_e\, n_i\, \bar{a} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega\tau}\, \delta(\tau)\, \mathrm{d}\tau\, \mathrm{d}\nu = \frac{2\varkappa}{m^2} n_e\, n_i\, \bar{a}\, \mathrm{d}\nu. \quad (9)$$

L'évaluation de l'intégrale a peut se faire par les méthodes usuelles et conduit pour un plasma d'hydrogène au résultat suivant [1], [2] :

$$\mathrm{d}P(\nu) = n_e\, n_i \frac{64\pi}{3\sqrt{2\pi}} \frac{e^6}{m^2 c^3} \sqrt{\frac{m}{kT}} \log\left(\frac{\rho_D}{p_0}\right) \mathrm{d}\nu \quad (10)$$

(ρ_D est la distance de Debye et $p_0 = e^2/2kT$). On peut remarquer que, dans ce formalisme, le résultat qui consiste en un fond continu d'intensité constante est directement lié à l'hypothèse d'une fonction de corrélation représentée par une fonction de Dirac. Mais comme le rapport τ_m/τ_M est assez proche de l'unité, il peut arriver, si certains effets sont capables d'augmenter le temps de corrélation, que cette approximation ne soit plus valable. Ceci entraînerait une variation de l'intensité du fond continu avec la longueur d'onde.

d) Un dernier exemple d'application simple de la relation (4) est celui du rayonnement cyclotronique. Considérons un électron en mouvement dans un champ magnétique uniforme $\boldsymbol{H}$ et subissant de plus des chocs avec d'autres particules ; ces chocs sont supposés instantanés et tels que la direction de la vitesse de l'électron après un choc soit statistiquement indépendante de la vitesse immédiatement avant le même choc. On a alors :

$$< \boldsymbol{F}(0) . \boldsymbol{F}(\tau) > = \frac{e^2}{c^2} < (\boldsymbol{v}(0) \times \boldsymbol{H})\ (\boldsymbol{v}(\tau) \times \boldsymbol{H}) >. \quad (11)$$

La moyenne dans le second membre peut se décomposer de la manière suivante :

$$< \boldsymbol{F}(0) . \boldsymbol{F}(\tau) > = \frac{e^2}{c^2} \overline{(\boldsymbol{v}(0) \times \boldsymbol{H}) . (< \boldsymbol{v}(\tau) > \times \boldsymbol{H})}$$

où $< \boldsymbol{v}(\tau) >$ est la moyenne sur tous les $\bar{\boldsymbol{v}}(\tau)$ possibles pour un $\boldsymbol{v}(0)$ fixé et où la barre indique une moyenne sur $\boldsymbol{v}(0)$. En vertu de l'hypothèse faite sur la nature des chocs, $< \boldsymbol{v}(\tau) > = 0$ dès que l'intervalle $(0, \tau)$ contient au moins une collision. Ainsi la fonction de corrélation cherchée sera égale à :

$$< \boldsymbol{F}(0) . \boldsymbol{F}(\tau) > = \frac{e^2}{c^2} \mathcal{P}_0(\tau)\ \overline{(\boldsymbol{v}(0) \times \boldsymbol{H}) . (\boldsymbol{v}(\tau) \times \boldsymbol{H})}$$

où $\boldsymbol{v}(\tau)$ est la vitesse de l'électron dans l'hypothèse ou il n'y a aucun choc entre 0 et τ ; elle se déduit de $\boldsymbol{v}(0)$ par une rotation d'angle $\omega_c\, \tau$ autour de la direction du champ magnétique ($\omega_c = eH/mc$). De plus $\mathcal{P}_0(\tau)$ est la probabilité qu'il n'y ait aucun choc entre les instants 0 et τ. En supposant valable ici, même en présence d'un champ magnétique, une distribution de Poisson pour les chocs, on a : $\mathcal{P}_0(\tau) = e^{-\tau/\tau_L}$. Il vient alors :

$$< \boldsymbol{F}(0) . \boldsymbol{F}(\tau) > = \frac{e^2}{c^2} \overline{v_\perp^2(0)}\, H^2 \cos\, \omega_c\, \tau\, e^{-\tau/\tau_L}$$

où $v_\perp = v \sin\theta$ est la projection de $\boldsymbol{v}(0)$ sur un plan perpendiculaire à $\boldsymbol{H}$. Or $e^2H^2/m^2c^2 = \omega_c^2$; on obtient donc la répartition spectrale suivante :

$$\mathrm{d}P(\nu) = 2\varkappa\omega_c^2\, \overline{v_\perp^2}\ \mathcal{R} \int_0^\infty e^{i\omega\tau}\, e^{-\tau/\tau_L} \cos\, \omega_c\, \tau\, \mathrm{d}\tau\, \mathrm{d}\nu.$$

Ou encore, en prenant une distribution maxwellienne des vitesses :

$$\mathrm{d}P(\nu) = 2\varkappa\omega_c^2 \frac{2kT}{m} \left(\frac{\tau_L^{-1}}{(\omega - \omega_c)^2 + \tau_L^{-2}} + \frac{\tau_L^{-1}}{(\omega + \omega_c)^2 + \tau_L^{-2}} \right) \mathrm{d}\nu. \quad (12)$$

Ce résultat est identique à celui obtenu par utilisation du théorème de Parseval [4].

DEUXIÈME PARTIE

Comme on l'a vu précédemment, la relation (4) permet de retrouver rapidement les résultats essentiels de la théorie de l'émission cyclotronique et de l'émission par transition hyperbolique. On peut espérer que son caractère de généralité permette d'obtenir des indications valables lorsque la théorie élémentaire de ces deux effets ne l'est plus.

Considérons un électron en mouvement dans un plasma, soumis de plus à l'action d'un champ magnétique extérieur uniforme $\boldsymbol{H}$. La force qui s'exerce sur cet électron est donc :

$$\boldsymbol{F} = \boldsymbol{F}_C + \boldsymbol{F}_H$$

où $\boldsymbol{F}_c$ est la force coulombienne due aux charges des autres particules et $\boldsymbol{F}_H$ la force due au champ magnétique $(e/c(\boldsymbol{v} \times \boldsymbol{H}))$. La fonction de corrélation du problème s'écrit :

$$\varphi(\tau) = < (\boldsymbol{F}_C(0) + \boldsymbol{F}_H(0)).(\boldsymbol{F}_C(\tau) + \boldsymbol{F}_H(\tau)) >. \quad (13)$$

La relation (4) indique alors que, d'après (13), le spectre de l'énergie émise par unité de temps est la superposition de deux spectres distincts obtenus par transformation de Fourier des deux fonctions de corrélation suivantes :

$$\begin{aligned} \varphi_1 &= < \boldsymbol{F}_C(0).\boldsymbol{F}_C(\tau) > \\ \varphi_2 &= < \boldsymbol{F}_H(0).\boldsymbol{F}_H(\tau) >. \end{aligned} \quad (14)$$

Ces fonctions se rapportent respectivement au rayonnement de freinage (modifié par la présence de $\boldsymbol{H}$) et au rayonnement cyclotronique (modifié par la présence du champ coulombien). Les termes rectangles, qui n'apportent pas de contribution appréciable à l'intensité totale, n'ont pas été mentionnés.

I. Étude de $\varphi_1(\tau)$. — On sait que dans les milieux ionisés l'influence des interactions multiples, à longue distance, est au moins aussi importante que celle des chocs binaires, à courte distance. Deux points de vue peuvent donc être adoptés pour une étude qualitative de φ_1 ; l'un utilise la notion de choc, donc surtout valable pour les faibles valeurs de τ, telles, par exemple, que $\tau\bar{v} < p_0$ où $p_0 = Ze^2/m\bar{v}^2$ est le paramètre de choc conduisant, pour un choc binaire électron-ion, à une déviation de $\pi/2$; l'autre utilise la notion de champ interne ; on en tiendra compte pour des valeurs de τ supérieures aux précédentes.

a) Examinons d'abord l'influence des « chocs », c'est-à-dire des approches électron-ion telles que, par exemple, la distance d'approche devienne inférieure à p_0 ; on supposera de plus que, si à l'instant 0 l'ion le plus proche de l'électron est l'ion numéroté 1, alors l'électron subira l'influence de nombreux autres ions avant de sortir de la sphère d'influence de cet ion n° 1. Ceci implique que $p_0 < \rho_D$ où $\rho_D = 6{,}9\ (T/n_e)^{1/2}$ est le rayon de Debye caractérisant le milieu ionisé. On se placera ensuite dans l'hypothèse d'un plasma d'hydrogène considéré comme un gaz de Lorentz (ions immobiles de masse infinie, charge des électrons de champ uniformément répartie dans l'espace). On prendra comme origine des coordonnées le centre de l'ion 1. A l'instant 0 on peut considérer que seul cet ion agit sur l'électron étudié puisque celui-ci se trouve près de la singularité du potentiel e/r_1 (autrement dit le fait prépondérant à l'instant 0 est le choc avec l'ion n° 1). On a donc :

$$\boldsymbol{F}_C(0) \sim \boldsymbol{F}_1(0).$$

De plus la seule fraction de $\boldsymbol{F}_c(\tau)$ pouvant avoir une corrélation avec $\boldsymbol{F}_1(0)$ est constituée par la force $\boldsymbol{F}_1(\tau)$ et par la somme des forces $\boldsymbol{F}_i(\tau)$ dues aux particules se trouvant dans la sphère de Debye centrée en 1. On a ainsi :

$$\varphi_{1a}(\tau) = < \boldsymbol{F}_1(0).\overline{\sum_i \boldsymbol{F}_i(\tau)} > = < \boldsymbol{F}_1(0).\boldsymbol{F}_{1D}(\tau) > \quad (15)$$

où la barre indique une moyenne sur toutes les positions possibles des ions dans la sphère de Debye de 1. L'expression $e^{-1}\ \boldsymbol{F}_{1D}(\tau)$ est le champ de Debye-Hückel :

$$\boldsymbol{F}_{1D} = e^2\,\boldsymbol{r}_1/r_1^3 \exp(-r_1/\rho_D)\,(1 + r_1/\rho_D).$$

La moyenne figurant dans le membre de droite de l'équation (15) ne porte plus que sur les positions possibles de l'électron émetteur (électron-test) à l'instant τ, soit $\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{s}$, par rapport à sa position $\boldsymbol{r}_1$ à l'instant 0. Si on introduit la probabilité

$$P(\boldsymbol{s}\ ;\ \boldsymbol{v}_0, \tau)\,\mathrm{d}\boldsymbol{s}$$

pour que l'électron, animé à l'instant 0 d'une vitesse $\boldsymbol{v}(0)$ subisse un déplacement compris entre $\boldsymbol{s}$ et $\boldsymbol{s} + \mathrm{d}\boldsymbol{s}$ pendant la durée τ et la probabilité $P(\boldsymbol{r}_1)\,\mathrm{d}\boldsymbol{r}_1$ pour qu'il se trouve repéré à l'instant 0 par un vecteur compris entre $\boldsymbol{r}_1$ et $\boldsymbol{r}_1 + \mathrm{d}\boldsymbol{r}_1$, on a :

$$\varphi_{1a}(\tau) = \int P(\boldsymbol{r}_1)\,\mathrm{d}\boldsymbol{r}_1\,P(\boldsymbol{v}(0))\,\mathrm{d}\boldsymbol{v}(0) \int P(\boldsymbol{s}\ ;\ \boldsymbol{v}(0), \tau)\,\boldsymbol{F}_1(\boldsymbol{r}_1)\ \boldsymbol{F}_{1D}(\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{s})\,\mathrm{d}\boldsymbol{s} \quad (16)$$

$P(\boldsymbol{v}(0))$ est la fonction de distribution de la vitesse de l'électron à l'instant 0. On a de plus :

$$P(\boldsymbol{r}_1) = n_e\,n_i \exp(-V_1/kT)$$

où V_1 est l'énergie potentielle de l'électron placé en $\boldsymbol{r}_1$. On la négligera et on posera :

$$P(\boldsymbol{r}_1) \sim n_e\,n_i.$$

Pour les petites valeurs de τ (c'est-à-dire telles que $\tau < p_0/\bar{v}$) on négligera la dispersion de $\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{s}$ par rapport à la valeur calculée $\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{v}(0)\,\tau$ en l'absence d'ions. D'où $P(\boldsymbol{s}\ ;\ v(0), \tau) = \delta(\boldsymbol{s} - \tau\boldsymbol{v}(0))$. Dans ces conditions il vient :

$$\varphi_{1a} = n_e\,n_i \int P(\boldsymbol{v}(0))\,\mathrm{d}\boldsymbol{v}(0) \int \boldsymbol{F}_1(\boldsymbol{r}_1).\boldsymbol{F}_{1D}(\boldsymbol{r}_1 + \tau\boldsymbol{v}(0))\,\mathrm{d}\boldsymbol{r}_1.$$

Le calcul de cette intégrale peut être assimilé (sachant que $|\boldsymbol{F}_{1D}| < |\boldsymbol{F}_1|$ et moyennant les mêmes considérations sur le domaine spectral étudié : $\omega \ll \bar{v}/p_0$) à celui de la fonction de corrélation (8). On a donc :

$$\varphi_{1a} = n_e\, n_i\, \bar{a}\, \delta(\tau). \qquad (17)$$

Pour les valeurs de τ plus grandes, mais néanmoins suffisamment faibles pour que l'électron n'ait pas de fortes chances d'être sorti de la sphère de Debye au temps τ ($\tau < \rho_D/\bar{v}$), on peut faire intervenir, dans (16), par l'intermédiaire de $P(\boldsymbol{s}\,;\,\boldsymbol{v}(0),\,\tau)$, le freinage du mouvement de l'électron par les particules situées à l'intérieur de la sphère de Debye de l'ion 1 ; ceci peut se faire approximativement en posant

$$P(\boldsymbol{s}\,;\,v(0),\,\tau) = (4\pi D\tau)^{-3/2} \exp\,(-|\boldsymbol{s}|^2/4D\tau) \qquad (18)$$

où D est le coefficient de diffusion de l'électron au sein du plasma. D sera pris égal à $kT/m\beta$ [8], β^{-1} étant le temps de relaxation généralisant pour le cas de forces à longue distance la notion de fréquence moyenne des chocs. En fait (18) n'est qu'une approximation pour la densité de probabilité $W_\beta(\boldsymbol{s}\,;\,\boldsymbol{v}_0,\,\tau)$ d'un déplacement $\boldsymbol{s}$ au temps τ, connaissant la vitesse $\boldsymbol{v}(0)$ au temps 0. L'influence de ce processus ne se fera sentir de manière appréciable que si, du fait du freinage, l'électron reste sous l'influence de l'ion 1 pendant une durée de l'ordre de grandeur, ou supérieure, à $\pi/2\omega$, c'est-à-dire si la distance moyenne l parcourue pendant le temps $\pi/2\omega$ est de l'ordre de, ou plus petite que le rayon de Debye. Soit, d'après le résultat classique d'Einstein :

$$l = \sqrt{2D\tau} \lesssim \rho_D = 6{,}9\ (T/n_e)^{1/2}.$$

En posant ci-dessus $\tau = \pi/2\omega$, on obtient la condition suivante, donnant la limite inférieure du domaine spectral dans lequel cet effet pourrait être observé :

$$\lambda \lesssim 100\ cT\ (Dn_e)^{-1}$$

(à titre d'exemple, on aurait, pour $T = 10^4$ °K et $n_e = 10^{12}$ cm^{-3}, $\lambda < 10^{-3}$ cm). On constate que pour les conditions physiques choisies, cette inégalité exclut le domaine des ondes centimétriques et millimétriques. Néanmoins, quand elle est réalisée, la fonction de corrélation comporte, en plus de la fonction de Dirac (17), le terme supplémentaire :

$$\varphi_{1b}(\tau) = n_e\, n_i \int P_D(\boldsymbol{s},\,\tau)\,\mathrm{d}\boldsymbol{s} \int \boldsymbol{F}_1(\boldsymbol{r}_1)\,.\,\boldsymbol{F}_{1D}(\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{s})\,\mathrm{d}\boldsymbol{r}_1. \quad (20)$$

L'intégrale en $\boldsymbol{r}_1$ sera calculée en assimilant, comme plus haut $\boldsymbol{F}_{1D}$ à $\boldsymbol{F}_1$. On obtient alors [9]

$$\int \boldsymbol{F}_1(\boldsymbol{r}_1)\,.\,\boldsymbol{F}_1(\boldsymbol{r}_1 + \boldsymbol{s})\,\mathrm{d}\boldsymbol{r}_1 = 4\pi e^4\,|\boldsymbol{s}|^{-1}$$

d'où

$$\varphi_{1b} \simeq n_e\, n_i\, e^4/\sqrt{D}\,.\,1/\sqrt{\tau}. \qquad (21)$$

D'après l'équation (4) la contribution de φ_{1b} à la distribution spectrale s'écrit alors :

$$\mathrm{d}P(\nu) = \frac{2\varkappa}{m^2}\,\mathcal{R}\int_0^\infty e^{i\omega\tau}(\varphi_{1a} + \varphi_{1b})\,\mathrm{d}\tau\,\mathrm{d}\nu$$

$$= I_{1a} + \frac{2\varkappa}{m^2}\,n_e\,n_i\,e^4\sqrt{\frac{m}{kT}}\sqrt{\frac{\beta}{\omega}}\,\mathrm{d}\nu \quad (22)$$

où I_{1a} est l'intensité du fond continu donnée par l'équation (10). Le fond continu tend donc, d'après cette correction, à diminuer d'intensité vers les grandes énergies.

Dans le cas où il existe un champ magnétique uniforme $\boldsymbol{H}$, les électrons s'enroulent autour des lignes de force de $\boldsymbol{H}$ et la diffusion électronique dans la direction perpendiculaire à $\boldsymbol{H}$ est très diminuée [10], [11]. L'effet de cette nouvelle entrave apportée au mouvement des électrons ne sera évidemment sensible dans le spectre que si le rayon de gyration ρ_G est plus faible que le rayon de Debye ρ_D, au delà duquel les corrélations dynamiques s'éteignent ; d'où la condition :

$$H > (6{,}9)^{-1}\,\frac{mc}{e}\,\bar{v}\left(\frac{T}{n_e}\right)^{1/2} \qquad (23)$$

(à titre d'exemple on peut voir que si $n_e = 10^{12}$ cm^{-3}, ceci exige $H > 2\,500$ gauss). Si la condition (23) est remplie et si, à l'instant 0, la vitesse $\boldsymbol{v}(0)$ de l'électron est sensiblement perpendiculaire à $\boldsymbol{H}$, celui-ci restera dans le champ des ions situés dans la sphère de rayon $\rho_D + \rho_G$ et centrée sur sa position moyenne pendant un temps beaucoup plus grand que $p_0/\bar{v}$. Dans ce cas aussi l'approximation de la fonction de corrélation par une fonction de Dirac n'est plus valable, et le problème est plus complexe car, d'une part l'émission du rayonnement devient anisotrope et, d'autre part le mouvement se fait, avant que l'électron ne s'échappe de la sphère d'action de l'ion 1, sur une trajectoire approximativement hélicoïdale non centrée sur l'ion n° 1. On prendra comme exemple le cas d'un plasma d'hydrogène totalement ionisé soumis à un champ magnétique constant $H = 3\,000$ gauss et où le rayon de Debye est

$\rho_D = 10^{-3}$ cm ($T = 2.10^{12}$ °K ; $n_e = 10^{11}$ cm^{-3}).

Dans ce cas un électron de vitesse 3.10^7 cm.s^{-1} perpendiculaire à $\boldsymbol{H}$ décrit un cercle de rayon $\rho_G = 5{,}7.10^{-4}$ cm. Cet électron n'aura une probabilité notable d'avoir parcouru par diffusion la distance ρ_D qu'après le temps $t = 10^{-6}/4D$. En estimant d'après [10] D à $0{,}6.10^{-4}$ cm^2 s^{-1} pour la direction perpendiculaire au champ magnétique, on obtient $t = 0{,}4.10^{-10}$ s. Dans le domaine des ondes centimétriques, d'autre part, l'approximation de Dirac n'est plus valable dès que

$$t > \frac{1}{10}\cdot\frac{\pi}{2\omega} \sim 10^{-12}.$$

C'est donc bien le cas pour les conditions expéri-

mentales ci-dessus et cet exemple montre qu'il serait alors nécessaire, pour le calcul du spectre, de tenir compte de l'effet de confinement des électrons par un champ magnétique dans la sphère de Debye d'un ion donné.

b) Passons maintenant à l'étude, dans le cas $\boldsymbol{H} = 0$, de l'influence exercée sur $\varphi(\tau)$ par la présence des particules ionisées du plasma considérées maintenant non comme susceptibles d'entrer en collision avec l'électron-test, mais au contraire comme génératrices d'un champ interne (somme de champs individuels) s'exerçant sur de grandes distances (de l'ordre de la distance de Debye) et de gradient relativement faible. On sait que ce champ interne est capable de dévier la direction de la vitesse de l'électron. La variation par unité de temps des composantes moyennes de $\boldsymbol{v}$ est connue sous le nom de coefficients de diffusion [3] ; la variation de $\boldsymbol{v}$ permet de plus de définir un temps de relaxation τ_v au bout duquel le vecteur vitesse, régi à l'instant 0 par une distribution microcanonique, peut être considérée comme statistiquement indépendant de $\boldsymbol{v}(0)$ et régi alors par une distribution maxwellienne. On a [3] pour un gaz de Lorentz :

$$\tau_v = \frac{m^2 v^3}{8\pi n_i e^4 \log \Lambda} \quad ; \quad \Lambda = \frac{3}{2} e^3 \left(\frac{k^3 T^3}{\pi n_e}\right)^{1/2}.$$

Puisque l'électron subit ainsi une altération dans sa vitesse, on peut considérer qu'il est soumis de la part des autres particules (la notion de choc étant exclue) à une force stochastique $\vec{\mathcal{F}}(\tau)$ dont on ignore l'évolution dans le temps, mais dont on connaît la valeur moyenne. Cette dernière peut se déduire du travail de Chandrasekhar [8] selon lequel l'accélération (ou plutôt la décélération) moyenne — $\Delta\boldsymbol{v}$ de l'électron pendant un temps Δt grand devant la durée d'un choc ($\Delta t > p_0/v$) mais plus petit que le temps de variation appréciable des grandeurs macroscopiques caractérisant le milieu est relié à sa vitesse par la relation :

$$\frac{\Delta \boldsymbol{v}}{\Delta t} = -\beta \boldsymbol{v}.$$

Le coefficient β, dit coefficient de friction dynamique, peut être considéré [8] comme l'inverse du temps de relaxation τ_v de la direction de la vitesse de l'électron émetteur. La force moyenne subie par l'électron du fait des actions à grande distance s'écrira donc :

$$\vec{\mathcal{F}}(t) = - m\beta(\boldsymbol{v}(t))\, \boldsymbol{v}(t).$$

On conçoit que cette force, dépendant du vecteur vitesse de l'électron, ait des propriétés de corrélation différentes de celles des forces coulombiennes examinées plus haut. Ces propriétés seront rapidement étudiées par l'intermédiaire de celles de la fonction :

$$\varphi_{1c}(\tau) = \langle \vec{\mathcal{F}}(0) . \vec{\mathcal{F}}(\tau) \rangle = m^2 \langle \beta(\boldsymbol{v}(0))\, \beta(\boldsymbol{v}(\tau))\, \boldsymbol{v}(0) . \boldsymbol{v}(\tau) \rangle. \quad (25)$$

On supposera que $|\boldsymbol{v}|$ varie peu avec t et on adoptera pour la corrélation de $\dfrac{\boldsymbol{v}(t)}{|\boldsymbol{v}(t)|}$ une décroissance exponentielle conditionnée par le temps de corrélation τ_v. D'ou :

$$\varphi_{1c}(\tau) = m^2 \overline{\beta^2(\boldsymbol{v}(0))\, |v(0)|^2}\, e^{-\beta\tau}.$$

La moyenne indiquée par une barre ne porte plus que sur $\boldsymbol{v}(0)$. En portant dans (4) on obtient la distribution spectrale suivante :

$$dP(\nu) = 2\varkappa\, \overline{\beta^2(\boldsymbol{v}(0))\, |\boldsymbol{v}(0)|^2 \frac{\beta}{\omega^2 + \beta^2}}\, d\nu.$$

C'est une moyenne sur des distributions de type Debye dont le maximum (pour $\omega = 0$) a la valeur :

$$dP(0) = 2\varkappa\, \overline{\beta(\boldsymbol{v}(0))\, |\boldsymbol{v}(0)|^2}\, d\nu = 2\varkappa n_e \frac{8\pi\, n_i\, e^4 \log \Lambda}{m^2\, v(0)}\, d\nu$$

$$\sim 2\varkappa n_e\, n_i \frac{8\pi e^4}{m^2} \sqrt{\frac{m}{kT}} \log \Lambda\, d\nu \quad (26)$$

De même que la fonction φ_{1b}, la fonction φ_{1c} ne peut pas être assimilée à une fonction de Dirac car le temps de corrélation mis en jeu $\tau_v = \beta^{-1}$ n'est pas nécessairement petit devant la période de la radiation émise. Par exemple pour

$$n_e = n_i = 10^{12}\ \text{cm}^{-3},$$

$T = 10^4$ °K et dans la région des ondes centimétriques on a d'après (23) $\tau_v \sim 0{,}5.10^{-8}$ s et $\pi/2\omega - 10^{-11}$ s. Remarquons que, contrairement à ce qui a été vu plus haut cet autre effet de corrélation n'est pas dû à l'extension spatiale du domaine d'action des forces en présence. En effet les ions agissant sur l'électron à l'instant 0 sont différents de ceux agissant à l'instant τ dès que l'électron a franchi une distance $2\rho_D$ c'est-à-dire dès que $2\rho_D/v < \tau$, par exemple pour les mêmes conditions physiques que ci-dessus dès que $\tau > 4.10^{-11}$ s, c'est-à-dire dès le millième du temps de corrélation τ_v. Le présent effet, au contraire, est dû à la persistence d'une grandeur physique attachée au système émetteur lui-même, à savoir la direction de la vitesse de l'électron.

II. Étude de $\varphi_2(\tau)$. — D'après (14) on a :

$$\varphi_2(\tau) = \frac{e^2}{c^2} \langle (\boldsymbol{v}(0) \times \boldsymbol{H}) . (\boldsymbol{v}(\tau) \times \boldsymbol{H}) \rangle. \quad (27)$$

Alors que la forme de $\varphi_1(\tau)$ dépendait de la corrélation de la force de caractère électrostatique agissant sur l'électron (donc, partiellement au moins, de sa position), on constate que celle de $\varphi_2(\tau)$ ne dépend que de la corrélation de sa vitesse entre les instants 0 et τ. On adoptera les coordonnées de la figure 2, le champ magnétique étant dirigé suivant l'axe z et la vitesse $\boldsymbol{v}(t)$ de l'électron étant repérée par les deux angles d'Euler $\theta(t)$ et $\varphi(t)$. En l'absence

de toute particule perturbatrice, la fonction de corrélation est proportionnelle à :

$$\delta(v_x - v_x(0) \cos \omega_c \tau) \ \delta(v_y - v_y(0) \sin \omega_c \tau) \ \delta(v_z - v_z(0)). \quad (28)$$

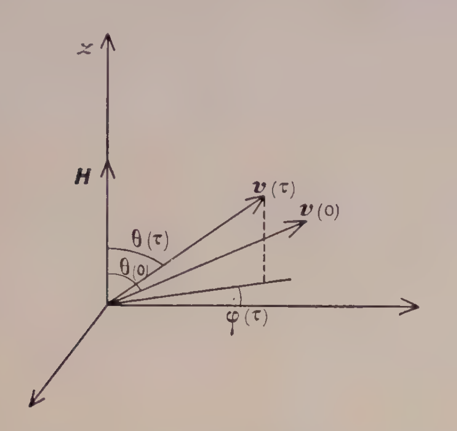


Fig. 2. — Évolution du vecteur vitesse d'un électron par rapport à un champ magnétique uniforme.

On a étudié dans la première partie la forme de $\varphi_2(\tau)$ dans le cas où l'on suppose :

a) que les chocs sont instantanés (rayon de gyration très grand devant le rayon d'action des forces ioniques) ;

b) que les chocs sont tels qu'il n'y a pas de corrélation entre σ avant le choc et $\boldsymbol{v}$ après le choc.

L'étude du cas général où les hypothèses *a*) et *b*) ne seraient pas faites nécessiterait la résolution des équations du mouvement d'un électron dans le champ d'un ion, l'ensemble étant plongé dans un champ magnétique constant et uniforme d'intensité quelconque. On se contentera ici de lever la restriction *b*).

Dans les coordonnées de la figure 2 on a :

$$\varphi_2(\tau) = \overline{v(0) \sin \theta(0) < v(\tau) \sin \theta(\tau) \cos \varphi(\tau) >} H^2 \quad (29)$$

(la barre indiquant une pondération sur les conditions initiales). On se placera dans le cas d'un gaz de Lorentz et on admettra que $|\boldsymbol{v}(\tau)|$ varie peu au moment des chocs : $|\boldsymbol{v}(\tau)| \equiv |\boldsymbol{v}(0)|$. Il faut donc calculer :

$$< \sin \theta(\tau) \cos \varphi(\tau) > = \sum_0^\infty \mathcal{P}_n(\tau) \ < \sin \theta \cos \varphi >^{(n)} = \sum_0^\infty \mathcal{P}_n(\tau) \ a^{(n)}$$

où $\mathcal{P}_n(\tau)$ est la probabilité pour que l'électron subisse n chocs dans l'intervalle de temps $(0, \tau)$ et $< >^{(n)}$ la moyenne de la quantité $\sin \theta \cos \varphi$ lorsque la durée τ comporte n chocs. On a :

$$a^{(n)} = \mathcal{R}\epsilon^{i\omega\tau} < \prod_1^{n-1} \epsilon^{i\Delta\varphi_i} \sin \theta_n (\cos \Delta\varphi_n + i \sin \Delta\varphi_n) >^{(n)}$$

où $\Delta\varphi_i$ est la variation de l'angle φ lors du i-ème choc et θ_n l'angle θ après ce i-ème choc. Si on désigne par $< >_n$ une moyenne sur toutes les possibilités au n-ième choc (c'est-à-dire, puisque $|\boldsymbol{v}|$ est constant, une moyenne sur le paramètre de choc p), on obtient :

$$a^{(n)} = < \prod_1^{n-1} \epsilon^{i\Delta\varphi_i} (< \sin \theta_n \cos \Delta\varphi_n >_n + i < \sin \theta_n \sin \Delta\varphi_n >_n) >^{(n)}.$$

Les chocs étant supposés de durée très courte devant la période de gyration, on raisonera sur le choc en ignorant la présence du champ magnétique. Les déflections $\Delta\varphi_n$ et $-\Delta\varphi_n$ étant alors également probables on aura :

$$< \sin \theta_n \sin \Delta\varphi_n >_n = 0.$$

De plus on a la relation suivante entre les angles de la figure 3 :

$$\sin \theta_{n-1} \sin \theta_n \cos \Delta\varphi_n = \cos \chi_n - \cos \theta_{n-1} \cos \theta_n$$

où χ_n est la déflection des tangentes à la trajectoire lors du n-ième choc. D'où :

$$\sin \theta_{n-1} < \sin \theta_n \cos \Delta\varphi_n >_n = < \cos \chi_n >_n - \cos \theta_{n-1} < \cos \theta_n >_n. \quad (30)$$

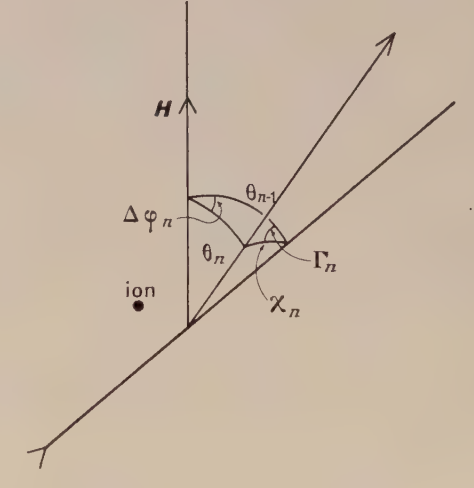


Fig. 3. — Déflection d'un électron par un ion supposé fixe (on n'a représenté que les tangentes aux trajectoires).

Le dernier crochet peut être obtenu à partir de la relation :

$$\cos \theta_n = \cos \chi_n \cos \theta_{n-1} + \sin \chi_n \sin \theta_{n-1} \cos \Gamma_n$$

où Γ_n est l'angle dièdre entre le plan contenant $\boldsymbol{H}$ et la tangente avant le choc et le plan analogue après le choc. Puisque l'azimut de l'ion déflecteur a une probabilité constante, par rapport à la trajectoire avant le choc, on aura :

$$< \sin \chi_n \cos \Gamma_n >_n = 0$$

d'où :

$$< \cos \theta_n >_n = \cos \theta_{n-1} < \cos \chi_n >_n$$

et, en portant cette égalité dans (30), il vient :

$$< \sin \theta_n \cos \Delta\varphi_n >_n = \sin \theta_{n-1} < \cos \chi_n >_n.$$

Nous avons donc :

$$a^{(n)} = < \cos \chi_n >_n < \left(\prod_1^{n-1} e^{i\Delta\varphi_i} \right) \sin \theta_{n-1} >^{(n-1)}$$

soit, par itération :

$$a^{(n)} = < \cos \chi_n >_n < \cos \chi_{n-1} >_{n-1} \cdots < \cos \chi_1 >_1 \sin \theta(0)$$

et, puisque les chocs sont indépendants :

$$a^{(n)} = \sin \theta(0).(< \cos \chi >)^n.$$

Bien que $\mathcal{P}_n$ dépende en toute rigueur de $\boldsymbol{H}$, on adoptera la distribution de Poisson

$$\mathcal{P}_n(\tau) = (n!)^{-1} (\tau/\tau_L)^n \exp(-\tau/\tau_L)$$

où τ_L^{-1} est la fréquence moyenne des chocs. Il vient alors :

$$\varphi_2 = \frac{e^2}{c^2} |v(0)|^2 \sin^2 \theta(0) \cos \omega_c \tau \sum_0^\infty \mathcal{P}_n < \cos \chi >^n H^2$$

$$= \frac{e^2}{c^2} v_\perp^2(0) \cos \omega_c \tau \, e^{-\frac{\tau}{\tau_L}(1-<\cos\chi>)} H^2$$

où $v_\perp$ est la composante de $\boldsymbol{v}$ sur un plan perpendiculaire à $\boldsymbol{H}$. Le spectre correspondant à cette fonction de corrélation est alors, par transformation de Fourier :

$$\mathrm{d}P(\nu) = \frac{2\varkappa}{m^2} \frac{e^2}{c^2} H^2 v_\perp^2(0) \frac{1 - < \cos \chi >}{\tau_L} \left\{ \frac{1}{(\omega - \omega_c)^2 + \left(\frac{1 - < \cos \chi >}{\tau_L}\right)^2} + \frac{1}{(\omega + \omega_c)^2 + \left(\frac{1 - < \cos \chi >}{\tau_L}\right)^2} \right\} d\nu.$$

Calcul de $< \cos \chi >$. — On a

$$< \cos \chi > = (2\pi(p_m^2/2))^{-1} \int_0^{p_m(v)} 2\pi \, p \, dp \cos \chi(p) \quad (31)$$

où $p_m(v)$ est le paramètre de choc au delà duquel on considère que la notion de choc perd son sens pour un électron de vitesse v. Connaissant l'expression de $\cos \chi$ dans un choc électron-ion [3], on obtient :

$$1 - < \cos \chi > = 2(e^2/mv^2)^2 \, p_m^{-2} \log (1 + (mv^2/e^2) \, p_m^2).$$

Si on définit, à titre d'exemple, la notion de choc à partir du moment ou l'électron subit une déflection de $\pi/2$ ($p_m = e^2/mv^2$), il vient alors :

$$1 - < \cos \chi > = 2 \log 2$$

et, puisque cette quantité est indépendante de v, la relation (31) se simplifie et donne, compte tenu du fait que, pour une distribution maxwellienne des vitesses $\overline{v_\perp^2} = 2kT/m$:

$$\mathrm{d}P(\nu) = \frac{2\varkappa}{m^2} \frac{e^2}{c^2} H^2 \frac{2kT}{m} \frac{2 \log 2}{\tau_L} \left\{ \frac{1}{(\omega - \omega_c)^2 + \left(\frac{2 \log 2}{\tau_L}\right)^2} + \frac{1}{(\omega + \omega_c)^2 + \left(\frac{2 \log 2}{\tau_L}\right)^2} \right\} d\nu$$

C'est donc seulement à partir de la définition un peu arbitraire de choc qui a été prise ci-dessus que l'on retrouve (au facteur 2 log 2 près) la forme spectrale obtenue par la théorie plus élémentaire de la première partie (équation (12)).

Remerciements. — Ce travail a été commencé au cours d'un séjour au Sloane Physics Laboratory, Yale University, New-Haven (Conn.). L'auteur désire exprimer ici sa vive reconnaissance au Pr Henry Margenau, grâce auquel ce séjour a été rendu possible.

Manuscrit reçu le 29 mars 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Denisse (J. F.), *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 164.
[2] Oster (L.), *Z. Astrophysik*, 1959, **47**, 169.
[3] Spitzer (L.), Physics of fully ionized gases, Interscience Publishers, New York, 1956.
[4] Oster (L.), *Phys. Rev.*, 1959, **116**, 474.
[5] Heitler (W.), The quantum theory of radiation, Oxford, 1954.
[6] Wang (M. C.) et Uhlenbeck (G. E.), *Rev. Mod. Physics*, 1945, **17**, 323.
[7] Ch'en (S. Y.) et Takeo (M.), *Rev. Mod. Physics*, 1957, **29**, 20.
[8] Chandrasekhar (S.), *Astrophys. J.*, 1943, **97**, 255.
[9] Taylor (J. B.), *Physics of Fluids*, 1960, **3**, 792.
[10] Guthrie (A.) et Wakerling (R. K.), The characteristics of electrical discharges in magnetic fields, McGraw-Hill Book Company, New York, 1949, p. 62.
[11] Tonks (L.), *Physics of Fluids*, 1960, **3**, 758.

MESURE ABSOLUE DES SECTIONS EFFICACES DES RÉACTIONS (n, p) ET (n, d) AVEC UN TÉLESCOPE A COINCIDENCES

Par MM. P. LÉVY et BONNEL,
Laboratoire de Synthèse Atomique et d'Optique Protonique du C. N. R. S.

Résumé. — Afin d'étudier sélectivement les réactions (n, p) et (n, d) avec divers éléments, nous avons effectué un montage comportant un télescope de coïncidences conduisant à une différentiation des particules par l'observation des coordonnées d'un point lumineux sur un oscilloscope. Associée à une mesure absolue du flux de neutrons, cette installation permet d'atteindre les sections efficaces totales et différentielles de réactions nucléaires. La réaction $^{19}F(n, d)^{18}O$ et la réaction de rupture du deuton sont données en exemple et les résultats comparés à des résultats antérieurs.

Abstract. — In order to study selectively, (np) and (nd) reactions for various elements, we built an arrangement compuring a coincidence telescope allowing differentiation of particles by observation of the coordinates of a spot on an oscilloscope. Together with absolute measures of neutrons flux, this installation allows us to measure total and differential nuclear reaction cross sections. $^{19}F(n, d)^{18}O$, and deuteron break up reactions are given as illustrative examples, and our results are compared with earlier results.

INTRODUCTION

L'étude de la répartition angulaire des particules émises lors des réactions avec des neutrons de 14 MeV jointe à une mesure précise du flux de neutrons incidents donne des renseignements intéressants.

La connaissance de $\delta\sigma/\delta\theta\ (E, \theta)$ permet de distinguer la proportion d'interaction avec formation de noyau composé de la proportion d'interaction directe, d'atteindre les températures nucléaires, et dans certains cas d'interaction directe de déterminer l'énergie et le moment orbital des premiers niveaux du noyau résiduel.

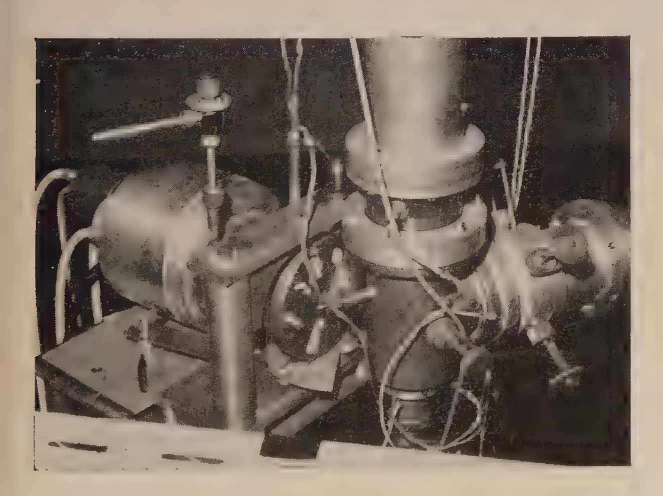


Fig. 1.

A l'époque où nous avons entrepris ce travail, un certain nombre de résultats avaient été obtenus sur les répartitions angulaires de protons soit par des caméras à plaques (avec inconvénient de mauvaises statistiques) soit avec un télescope à proton ; ces expériences ne permettaient pas de déterminer la nature des produits de la réaction et leurs résultats laissant supposer l'existence de réaction (n, d).

Nous avons donc essayé de réaliser une installation permettant d'analyser sélectivement les protons ou les deutons dans une très large gamme d'énergie tout en mesurant de façon précise le flux de neutrons incidents. La photo n° 1 montre la disposition des appareils de détection.

I. **Mesure du flux de neutrons.** — *a*) Nous avons choisi la méthode de la particule associée [1] qui consiste à compter les α de la réaction $d(T, \alpha)n$ — dans un angle solide donné. La direction a été prise à 90° pour laquelle la répartition en énergie des α est la plus étroite. Une légère correction est appliquée pour tenir compte du fait que les neutrons utilisés ne sont pas pris dans une direction d'émission associée à la direction des α mesurés. Un certain nombre de précautions doivent être prises pour obtenir une grande précision et une bonne stabilité des mesures, en effet :

a) La largeur du pic varie avec l'énergie des deutons incidents.

Nous avons utilisé successivement le tube 300 kV construit par l'un de nous (PL) et le générateur 900 kV du Laboratoire de Synthèse Atomique.

b) Le bruit de fond est fonction de la tension de fonctionnement et du réglage de la focalisation de l'accélérateur.

c) Les produits des réactions parasites

$$D(D, n)^3He, \qquad D(D, p)T$$

qui ont lieu soit dans la cible elle-même soit dans son support sont présents dans le spectre ; leur nombre augmente en fonction du temps et varie en fonction des conditions de marche du tube accélérateur. (L'observation du spectre fournit d'ailleurs une méthode de réglage rapide du centrage et de la focalisation du faisceau.) Il faut donc isoler le pic au maximum en réduisant le bruit de fond, en interposant le minimum de matière sur le trajet des α et encadrer ce pic par la fenêtre d'un sélecteur.

La figure 1 *bis* montre la disposition des différents éléments. La feuille de 200 μg/cm² d'alu sert à éliminer les photons lumineux produits au voisinage de la cible. Aucun diaphragme ne se trouve sur le trajet du faisceau et l'angle solide est défini par la surface du cristal (Ø = 4 mm, *e* = 1/10 mm) ce qui évite les diffusions parasites des α (pour la même raison les parois des pièces ont été éloignées du faisceau utile).

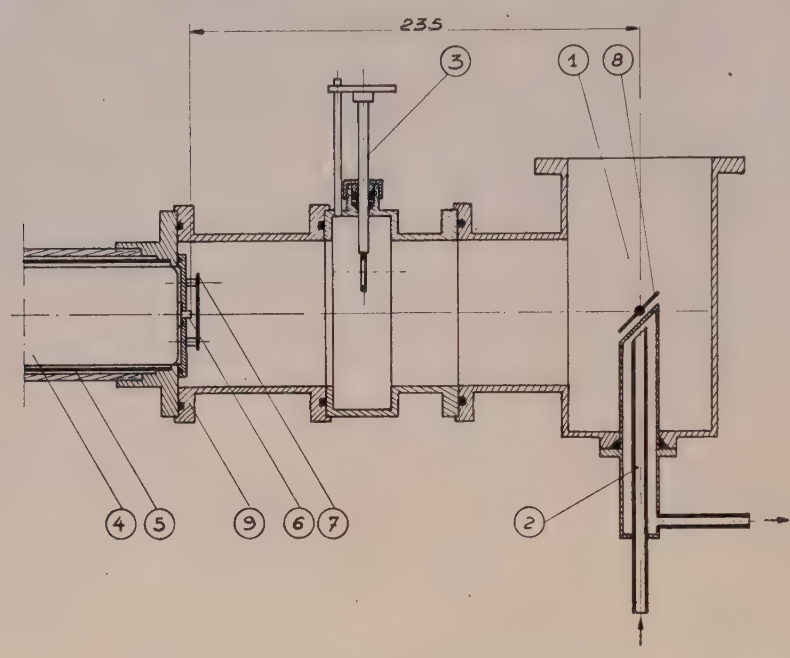


FIG. 1 *bis*. — Coupe schématique du moniteur.

1. Pièce porte cible. — 2. Circuit de réfrigération. — 3. Écran d'aluminium amovible (un sur cinq représenté). — 4. Photomultiplicateur. — 5. Blindage μ-métal. — 6. Cristal. — 7. Écran d'aluminium (200 μg/cm²). — 8. Masque amovible.

L'interposition d'écrans d'aluminium calibrés permet d'identifier la nature des particules observées par le déplacement des pics sur le spectre. La plaque effaçable située devant le porte cible sert de butée pour le positionnement de la cible, de masque permettant les réglages du tube sans émission de neutrons et de support de source pour les réglages du moniteur.

La figure 2, montre deux spectres types correspondant l'un à une cible neuve non chargée en deutons, l'autre à une vieille cible chargée en deutérium.

Si l'on utilise un cristal épais (2 mm), il n'y a plus de séparation nette entre le pic et le bruit de

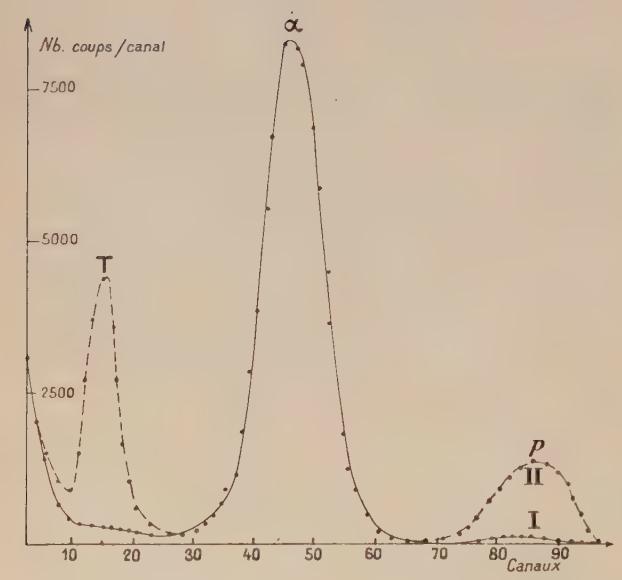


FIG. 2. — Spectres obtenus avec le moniteur α. La courbe II montre les pics parasites dus à la réaction d(dp)T.

fond, et il apparaît d'autre part un pic correspondant au protons de 13,8 MeV de la réaction ^{3}He(dp)^{4}He (^{3}He provenant de la désintégration du tritium). Une étude séparée en comparant les taux de comptage α-protons simultanément mais avec des angles solides différents, a montré que le nombre d'α produit par cette réaction parasite et comptés simultanément sont suffisamment faibles pour ne pas mettre en cause la précision de la mesure. Ce phénomène serait toutefois à considérer pour des sources stockées un certain temps.

Compte tenu des mesures précises de la géométrie du système à mieux que 0,5/00 on peut estimer la précision du moniteur à ± 2,5 %.

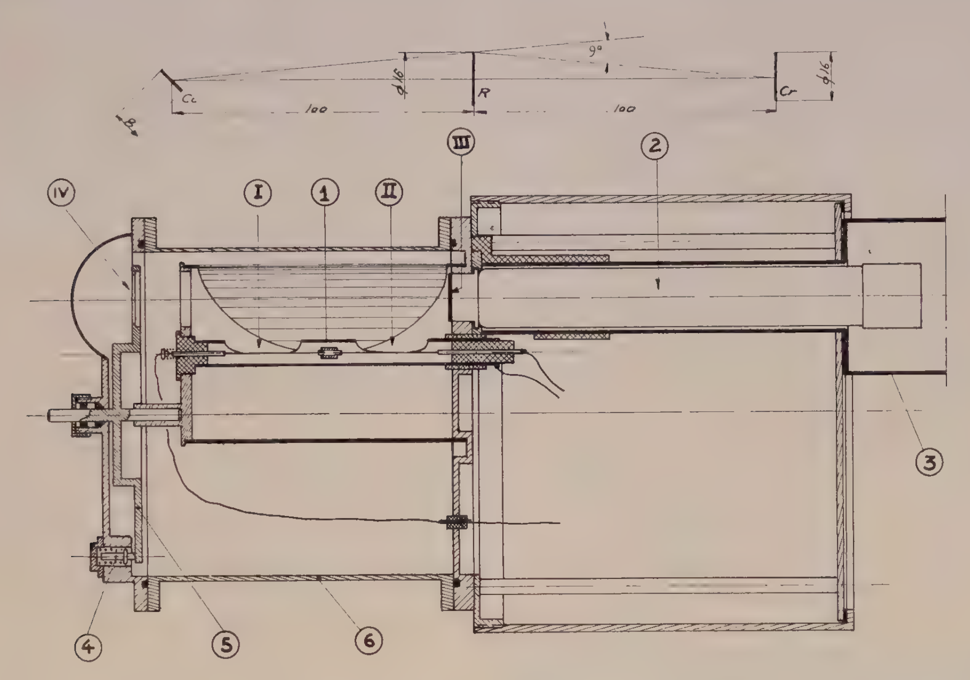


FIG. 3. — Coupe du télescope. — I-II. Zones utiles des compteurs proportionnels. — III. Cristal d'ICs. — IV. Radiateur.
1. Tube de champ. — 2. Photomultiplicateur. — 3. Boîtier du préamplificateur PM. — 4. Billage. — 5. Roue porte radiateurs. — 6. Boîtier.

II. **Construction du télescope.** — Le télescope réalisé est dérivé du télescope construit par Johnson et Trail [2] — avec un certain nombre de modifications mécaniques facilitant le démontage. Le choix de la géométrie est assez arbitraire étant donné le nombre de paramètres entrant en jeu ; un compromis est nécessaire entre l'efficacité et la dispersion angulaire. A efficacité et résolution angulaire égales, nous avons préféré un télescope de petites dimensions qui facilite la préparation des radiateurs notamment dans le cas d'isotopes séparés et diminue les fluctuations des impulsions dans le temps (voir § 3), nous fixant comme objectif la meilleure séparation possible des protons et des deutons. Nous nous sommes orientés vers un télescope utilisant pour la coïncidence deux compteurs proportionnels coaxiaux dotés de tubes de champ fournissant simultanément l'information (voir § 3) avec la meilleure définition possible. Par contre l'expérience a prouvée que la présence du tube de champ introduisant au bruit de fond important. Une coupe du télescope est indiquée sur la figure 3 — ainsi que les éléments géométriques essentiels.



FIG. 3 *bis*. — Le télescope partiellement démonté.

L'angle solide est de : 2 10^{-2} stéradians et pour une distance cible radiateur de 10 cm adoptée dans les expériences l'ouverture angulaire maximum est de 13°32': l'angle moyen de 5°, pour une orientation à 0°. Le télescope tourne autour de deux pivots dont l'axe passe par le centre du radiateur. Une roue porte écran comporte cinq logements sur lesquels sont fixés une source de plutonium, un radiateur de polyéthylène ou de deutéro-paraffine, une cible épaisse de paraffine ou de deutéro paraffine (voir § 3), le radiateur en étude et un support de radiateur nu pour la mesure du bruit de fond. La roue peut-être tournée de l'extérieur par l'intermédiaire d'un passage étanche ; son positionnement précis est assurée par un billage (*fig. 3 bis*).

Le cristal d'iodure de césium (épaisseur 1,5 mm) est couplé à un photomultiplicateur K 1382 par l'intermédiaire d'un guide de lumière en plastique qui assure l'étanchéité. Pour diminuer le bruit de fond il y a intérêt à garnir les zones des télescopes pouvant donner lieu à des triples coïncidences réelles avec un métal lourd. C'est pourquoi la face avant et l'ouverture dans la paroi du compteur sont recouvertes de plomb. Le boîtier est garni de plomb à l'avant et d'aluminium dans les zones ne pouvant produire de triple coïncidence. L'expérience a prouvé que le plomb ne donnait pas de bon résultats, étant donné, l'impossibilité de le dégazer. Il sera remplacé par de l'or. De même le dépôt d'or sur la partie avant du tube de champ est insuffisant. Le cristal est métallisé par écrasement sur la surface d'une feuille d'aluminium de 200 mg/cm² pour éliminer les photons lumineux produits au voisinage du fil. Le fil du compteur est tendu par un ressort et facilement démontable.

III. **Compteurs proportionnels.** — Pour déterminer la géométrie des compteurs proportionnels la nature et la pression du gaz de remplissage, il faut tenir compte d'un certain nombre de facteurs.

a) La nature du gaz joue sur la vitesse de déplacement des électrons ; comme ceux-ci sont formés à des distances différentes du fil, il s'ensuit une dispersion dans le temps des impulsions ce qui impose une limite à la résolution du circuit de coïncidence.

b) La résolution en énergie comme le temps de collection varie considérablement avec la présence d'impuretés.

c) La perte d'énergie totale de la particule le long de sa trajectoire modifie le spectre d'énergie enregistré par le compteur ce qui réagit sur la réalisation du système de discrimination des particules.

d) Les réactions produites dans le gaz, l'efficacité de détection des photoélectrons arrachés aux parois jouent un rôle important dans la production du bruit de fond.

Il est évident qu'il y a un optimum dans le choix des paramètres pour un type de particules d'énergie donné. Le but de l'installation étant d'étudier en une seule fois une large gamme d'énergie faibles conduit à admettre que les particules de fortes énergies ne laissent dans les compteurs qu'une énergie d'un ordre de grandeur voisin de la perte d'énergie maximum. Dans ce cas, la dispersion statistique est régie par une courbe de Landau dissymétrique 7-8, et le maximum de la répartition correspondante à la perte d'énergie la plus probable est donnée par la formule :

$$\Delta E = \frac{C m_e M e^4 x}{E} \left\{ \ln \frac{4 C m_e^2 e^4 x}{(1 - \beta^2) I^2(Z)} - \beta^2 + j \right\}$$

M : masse de la particule,
E : énergie de la particule,
x : épaisseur de l'absorbant,
C : constante fonction de l'absorbant,
Me : masse de l'électron,
Z nb : atomique de l'absorbant,
I : potentiel moyen d'excitation de l'absorbant
j : facteur de correction.

Pour une distance radiateur scintillateur donnée, on peut choisir d'utiliser la plus grande partie de celle-ci pour le compteur proportionnel servant à mesurer ΔE, ce qui permet de disposer d'une perte d'énergie relativement importante en réservant l'espace restant à un compteur proportionnel grossier uniquement destiné à la définition de la direction. On peut aussi utiliser également cette distance pour construire deux compteurs proportionnels identiques de bonne performance, séparés l'un de l'autre part une certaine distance ; la perte d'énergie mesurée par chacun d'eux est alors relativement plus faible et la dispersion statistique plus grande. Cependant si l'on met en coïncidence les impulsions provenant des deux compteurs proportionnels dans un circuit de Rossi [9], celui-ci sort une impulsion égale à la plus petite des impulsions ce qui réduit la dispersion statistique pour le parcours que nous nous étions fixés. L'étude des diverses combinaisons possibles au moyen de la théorie de Landau montre que du point de vue de la résolution en énergie les deux solutions donnent des résultats équivalents.

Nous avons choisi la seconde qui en principe permet de diminuer la résolution du circuit de coïncidence et devrait réduire les chances de coïncidences réelles entre les deux compteurs proportionnels qui sont relativement éloignés l'un de l'autre.

Le mélange utilisé est du krypton avec 5 % de CO_2. La pression moyenne de fonctionnement est de 20 cm Hg. Au début des expériences, nous utilisions un four à calcium solidaire du télescope pour la purification du gaz, dont la circulation était assurée par une petite turbine. Nous l'avons abandonné, les résultats obtenus étant équivalents en prenant la précaution d'effectuer le remplissage à travers un

mélange réfrigérant. Sur une période d'un mois, on observe aucune détérioration appréciable des spectres obtenus.

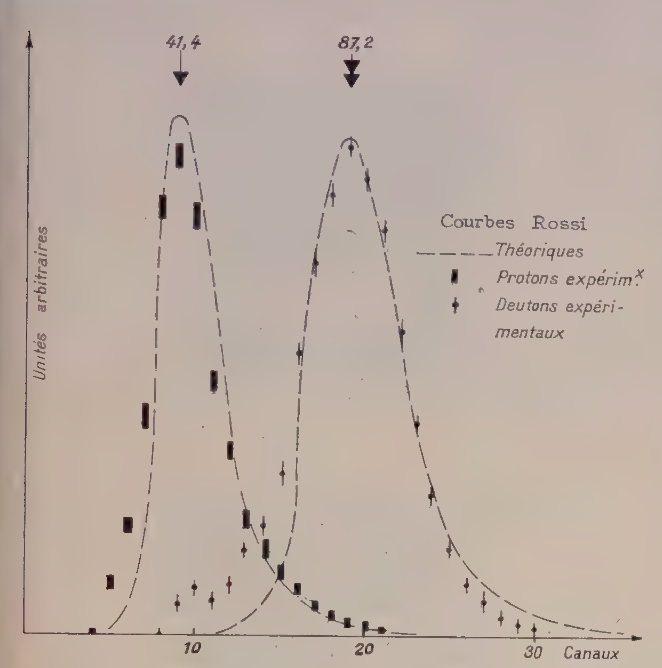


Fig. 4. — Spectre de distribution d'énergie à la sortie du circuit de Rossi pour des protons de 14,1 MeV et des deutons de 12,5 MeV (radiateurs de 15 mg/cm²). Les courbes sont les courbes théoriques déduites de la théorie de Landau.

La figure 4 montre, comparés avec les courbes théoriques, les résultats obtenus avec des neutrons de 14,1 MeV, un radiateur de paraffine de 15 mg/cm² et un radiateur de deutéro paraffine de 15 mg/cm². L'élargissement à la base du pic de deutons est dû à la présence de protons provenant de la réaction de rupture du deuton. Ces résultats sont comparables à ceux obtenus par Kuo et al. [14] qui utilisent un seul compteur de définition de perte d'énergie. Par contre nous pouvons utiliser une résolution en temps plus faible.

On voit qu'à première vue il n'est pas possible de séparer complètement les protons des deutons à cette énergie. Pour un réglage parfait il restera quelques % de protons dans un spectre de deutons.

III. **Méthode de sélection des particules.** — Que l'on ait à utiliser la formule de Bethe ou la formule de Landau le produit $E\delta E/\delta x$ est à peu près constant et proportionnel à M. Une solution au problème de la sélection est donc d'effectuer électroniquement le produit. Toutefois aux basses énergies, il devient nécessaire de rajouter à E un terme $k\Delta E$, k n'étant ailleurs pas constant ce qui complique les réglages. C'est pourquoi nous avons préféré utiliser la méthode consistant à tracer sur un oscilloscope la courbe $E = f(\delta E/\delta x)$. Chaque impulsion en coïncidence produisant un point ayant pour coordonnées l'amplitude des impulsions E et $\delta E/\delta x$; les protons et les deutons se placent sur des courbes voisines ; si l'on veut les séparer, il suffit de masquer l'une des courbes et de regarder l'écran de l'oscilloscope avec un photomultiplicateur dont l'impulsion mise en forme servira à débloquer l'analyseur multicanaux. Le montage que nous avons adopté permet de former le cache par le phénomène lui-même, tient compte automatiquement de la non linéarité apparente de l'énergie due aux pertes dans le compteur, des résolutions expérimentales et permet d'apprécier directement la qualité du réglage.

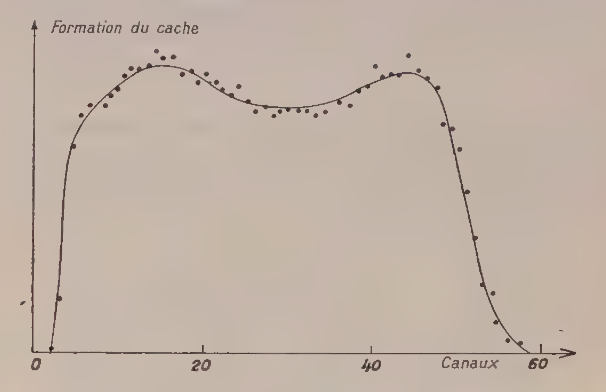


Fig. 5. — Spectre de cible épaisse.

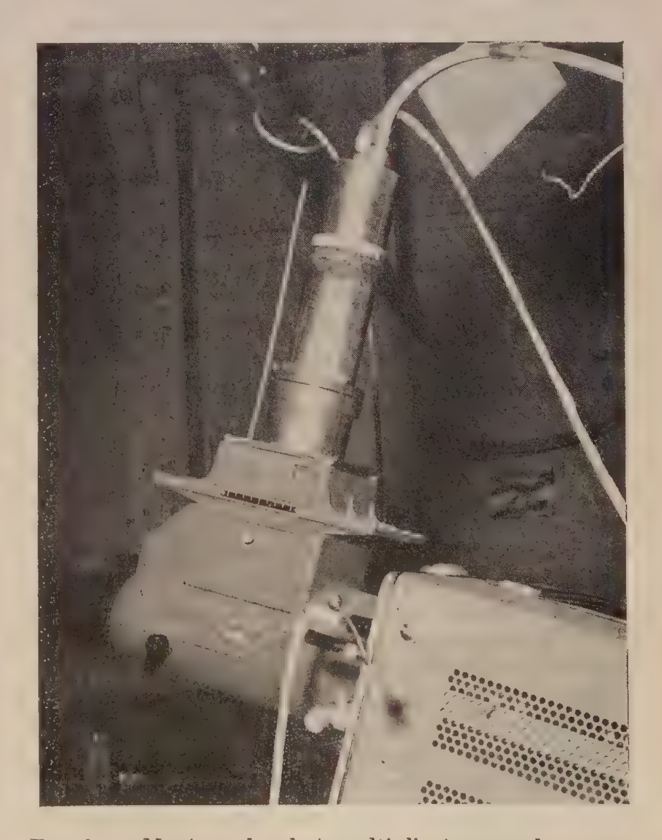


Fig. 6. — Montage du photomultiplicateur sur la caméra.

On réalise un spectre continu de protons en irradiant à 0° un radiateur épais de paraffine ; l'épaisseur étant limitée par des considérations mécaniques la moitié de ce radiateur est recouverte d'une feuille d'aluminium d'environ 4 MeV d'épaisseur, ce qui provoque la superposition d'un spectre décalé vers les basses énergies. On obtient ainsi le spectre de la figure 5 qui peut être corrigée en irradiant un temps supplémentaire à un angle convenablement choisi. Au cours de l'irradiation on photographie la courbe sur film transparent au moyen d'une caméra polaroïde Dumont, la chambre à film est ensuite retirée et remplacée par la chambre à plaque de cette caméra sur laquelle on vient fixer un montage où le film obtenu précédemment occupe rigoureusement la même position que lors de la photographie (*fig.* 6, 7). Un photomultiplicateur regarde l'écran de l'oscilloscope à travers le cache et le système de lentilles de la caméra. Le fait de pouvoir disposer à tout intant de l'obturateur permet de contrôler fréquemment les réglages de l'oscillographe en cours d'expérience. De faibles dérives du zéro peuvent en effet provoquer des erreurs importantes.

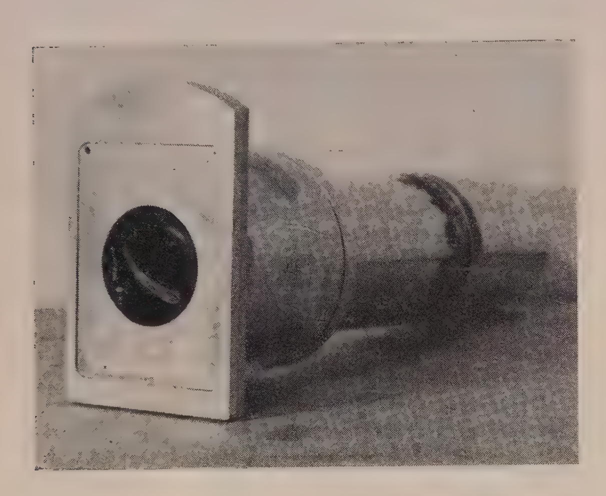


Fig. 7. — Porte-cache. Le cache visible sur la photo occupe le plan image de la caméra.

Le même procédé utilisé avec une cible épaisse de deutéro paraffine permet de tracer simultanément une courbe de deutons et une courbe de protons provenant de la réaction n(d, 2n)p et d'apprécier directement le degré de séparation obtenu.

Deux clichés caractéristiques sont montrés (*fig.* 8-9). Il apparaît immédiatement sur ces clichés que les coïncidences fortuites sont répartis uniformément sur la surface et spécialement dans une zone voisine de l'origine, le noircissement de cette zone les élimine complètement.

De plus la méthode de production photographique du cache présente de gros avantages. On peut par reproduction jouer sur les contrastes, remplacer une courbe transparente par une courbe opaque. Comme il n'est pas possible de disposer d'une source de deutons dépourvue de protons, la sélection se fait en supprimant les protons avec un cache inversé.

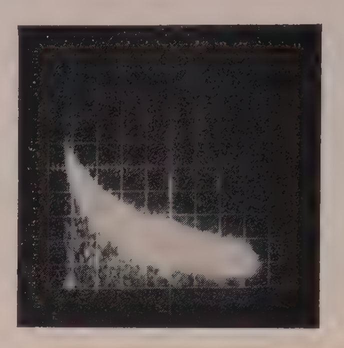


Fig. 8. — Cache correspondant à une courbe de protons.

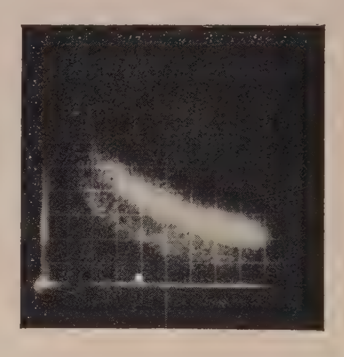


Fig. 9. — Cache obtenu en irradiant de la paraffine lourde. La courbe la plus intense correspond aux deutons diffusés, l'autre aux protons de la réaction n(D, 2n)p (les (amplifications sont différentes sur les 2 clichés).

Enfin, la densité optique varie rapidement d'une façon continue sur le pourtour du cache traduisant les dispersions d'énergie des spectres d'impulsions (*fig.* 10). (L'obtention d'une telle répartition nécessite de grandes précautions dans le réglage de la luminosité et la manipulation des clichés, des ré-

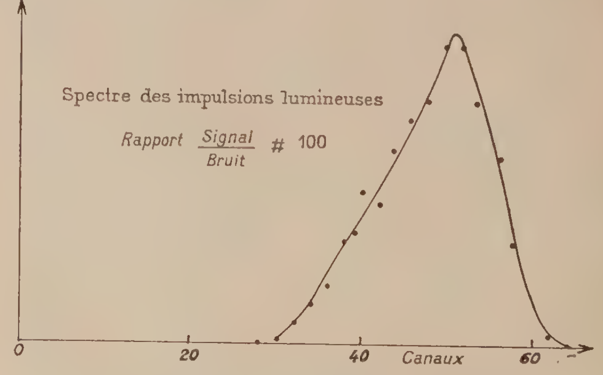


Fig. 10. — Spectre des impulsions lumineuses vues à travers un cache.

flexions des tracés de doigts ou des rayures la perturbent très facilement.

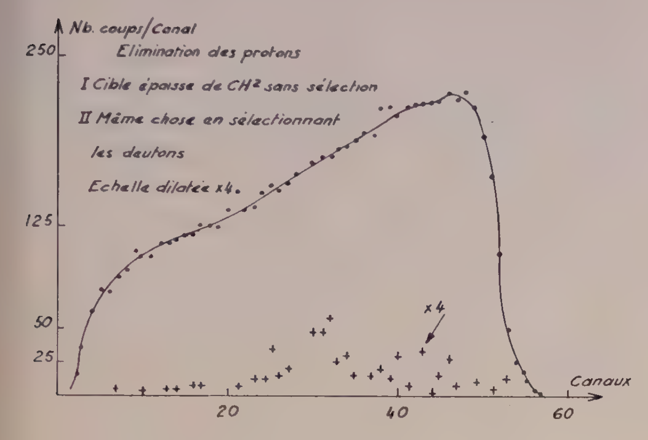


Fig. 11. — Élimination des protons.

En discriminant l'amplitude des impulsions de photomultiplicateur, on peut en quelque sorte « border le contour », par exemple pour éliminer complètement les deutons dans les zones de recouvrement en acceptant une certaine perte de protons, on établit alors très facilement une courbe de correction de pertes en enregistrement simultanément un spectre continu de protons dans les deux sélecteurs multicanaux avec et sans sélection de particules.

Selon une idée de M. Bonnel, nous étudions la possibilité de réaliser un cache ou les zones correspondant aux deutons et aux protons seraient de densité optique différentes. Il suffirait de sélectionner la taille des impulsions lumineuses pour pouvoir enregistrer simultanément des spectres séparés de deutons et de protons.

IV. **Électronique.** — Le bloc diagramme de l'installation est représenté figure 12.

La mise en route et l'arrêt de l'ensemble de l'installation est commandé par l'échelle prédéterminée reliée au moniteur. L'intégrateur permet la conduite de l'accélérateur en se référant au flux de

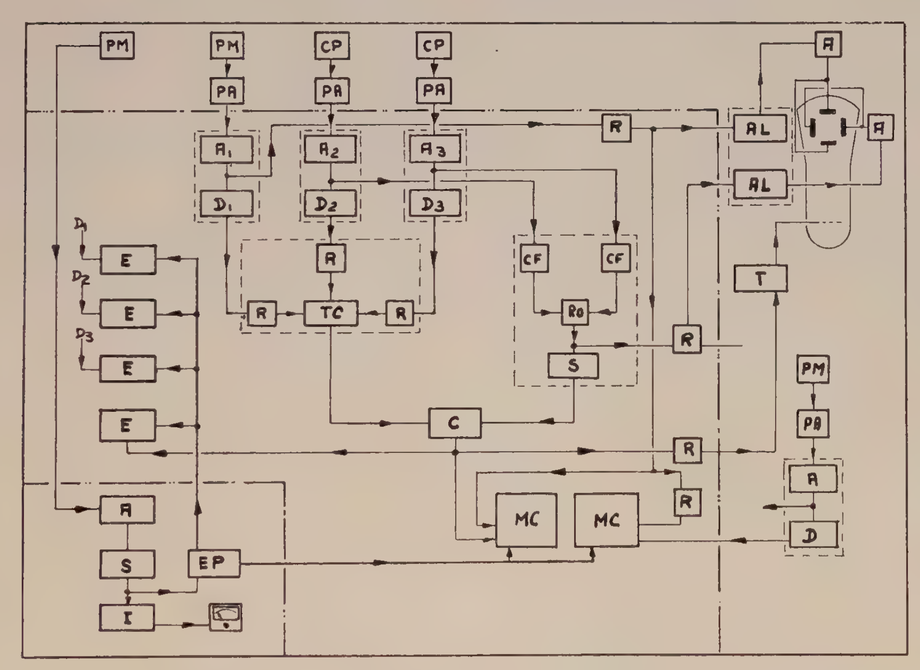


Fig. 12. — Bloc diagramme de l'électronique.

PM : Photomultiplicateur. — CP : Compteur proportionnel. — PA : Préamplificateur. — A : Amplificateur. — D : Discriminateur. — R : Retard. — TC : Triple coïncidence. — C : Coïncidence. — T : Trigger. — RO : Rossi. — S : Sélecteur. — AL : Allongeur. — Mc : Sélecteur multicanal. — E : Échelle. — EP : Échelle prédéterminée. — I : Intégrateur.

Les alimentations des détecteurs ne sont pas représentées. Les éléments de référence de l'alimentation stabilisée commune aux compteur proportionnels sont thermostatés.

neutrons. Les échelles E_1 — E_2 — E_3 permettent d'effectuer les corrections de pertes et de coïncidences fortuites, de plus leurs indications permettent de s'apercevoir rapidement d'un déréglage du moniteur ou de l'amplificateur des différentes chaînes.

Les amplificateurs sont de types non saturables et les discriminateurs d'un type présentant peu de

variations de retard au déclenchement, en fonction de l'amplitude des impulsions (Triggers déclanchés par la partie négative de l'impulsion différentiée).

Le circuit du triple coïncidence comprenant trois boîtes à retard incorporés est du type à somme qui a l'avantage de pouvoir fonctionner en double coïncidence par simple réglage d'un seuil de discrimination. La possibilité d'observer la sortie du circuit somme permet de contrôler simultanément en cours d'expérience le fonctionnement des trois voies de discrimination. La largeur des impulsions est réglable de 0,3 à 2 μs. Avant l'attaque du circuit de Rossi, les impulsions sont légèrement intégrées pour diminuer la dispersion d'amplitude produite par les fluctuations des impulsions dans le temps.

Les allongeurs permettent de maintenir les amplitudes correctes sur les plaques de l'oscilloscope jusqu'à l'arrivée de l'impulsion d'illumination du Trigger T ; cette dernière est réglable en amplitude et en durée de 1 à 10 μs. Sous réserve de faire les corrections de taux de pertes, la limite du taux de comptage acceptable n'est pas imposée par l'électronique mais par les compteurs proportionnels. On fonctionne sans distorsions jusqu'à 16 000 c/s en sortie des discriminateurs $D_1 — D_2$ (seuil correspondant à 4 keV).

Après chaque nouveau remplissage ou chaque modification de seuil, il est nécessaire de tracer un jeu de courbes des résolutions pour différentes bandes d'énergie en utilisant une cible épaisse ; il faut en effet tenir compte des variations possible du temps de collection et des légères variations de retard en fonction de l'amplitude qui peuvent être introduites par l'électronique. Les courbes reproduites figure 13, obtenues avec des largeurs d'impulsions de 1,2 μs dans le triple coïncidence indiquent une fluctuation de temps de collection de 0,4 μs (déduite de la largeur du flanc de la courbe) et présentent un plateau montrant la réduction possible de la résolution en temps.

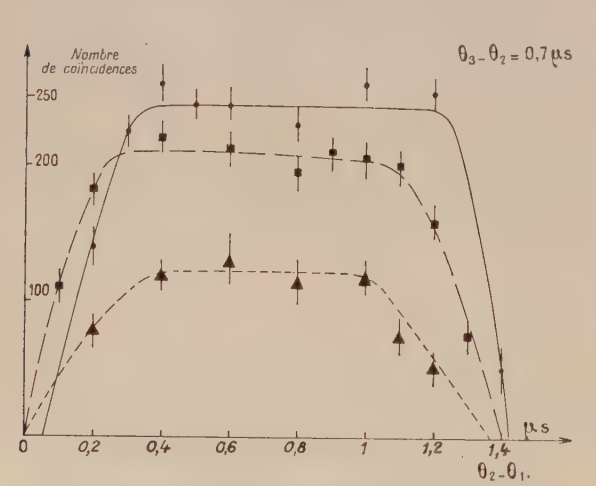


Fig. 13. — Courbes de résolution en temps.
Les 3 courbes correspondent à des bandes d'énergie d'environ 5 MeV chacune (de 0 à 14 MeV).

V. **Résultats expérimentaux.** — Pour chaque série de courbe on effectue les réglages suivants :

— Ajustage des gains très précis des deux chaînes dE/dx et contrôle de la largeur de la courbe de résolution en énergie avec un radiateur mince de polyéthylène.

— Ajustage de gain de la chaîne PM avec pic de protons de 14 MeV.

— Contrôle du réglage du cache avec des spectres de cible épaisse y compris l'enregistrement du spectre d'impulsions lumineuses pour le réglage de l'intensité du spot qui réagit aussi sur les retards de l'impulsion de déblocage.

— Contrôle du moniteur en enregistrant le spectre α sur un sélecteur débloqué ou non par l'impulsion issue du sélecteur de bande. Ces tarages sont répétés toutes les heures. Pour déterminer l'angle 0° vrai on trace la courbe du taux de comptage en fonction de l'angle avec un radiateur de paraffine lourde, la section efficace différentielle (n, d) ayant un maximum très prononcé à 0°.

A) Courbes de références. Comparaison du moniteur et du télescope comme moniteurs absolus. — La figure 14 montre une courbe de protons de 14,1 MeV (radiateur d'épaisseur 13,5 mg/cm²) avec et sans déduction de bruit de fond. On remarque l'existence d'une légère traînée due aux neutrons diffusés au voisinage de la cible.

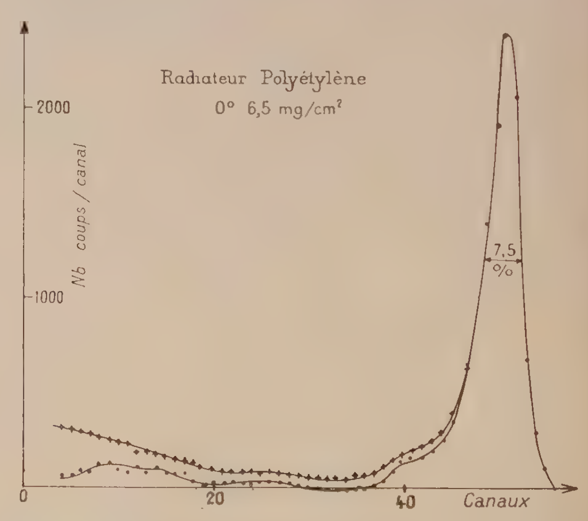


Fig. 14. — Spectre de protons à 0°. La courbe inférieure est la courbe après déduction du bruit de fond.

L'efficacité du télescope avec un radiateur de polyéthylène de 13,5 mg/cm² est de $1{,}044.10^{-7}$ coups par neutrons par stéradian, $\pm$ 3,5 % à la

source (déterminée en utilisant les tables de Bame [16]. L'erreur pourra être réduite par une mesure plus précise des éléments géométriques et du poids de polyéthylène.

Une mesure simultanée donne un nombre de neutrons par stéradian de $1{,}54\ 10^{11} \pm 5\ \%$ (dont 1,5 % d'erreur statistique) avec le télescope et de $1{,}554\ 10^{11} \pm 2{,}5\ \%$ avec le moniteur.

B) Étude de la réaction $^{19}F(n, d)^{18}O$. Sélection des deutons. — On utilise un radiateur de téflon.

La figure 14 montre, dans les conditions du réglage, l'élimination des protons d'une cible épaisse de paraffine légère.

La figure 15 montre une mesure simultanée avec et sans sélecteur des particules dans le cas d'un bruit de fond de protons important produit par des impuretés sur le support de radiateur. L'analyse d'une série de mesures sans sélection de particules a permis de vérifier que la sélection au moyen de l'oscilloscope n'introduisait aucune perte de deutons dans le domaine d'énergie étudié.

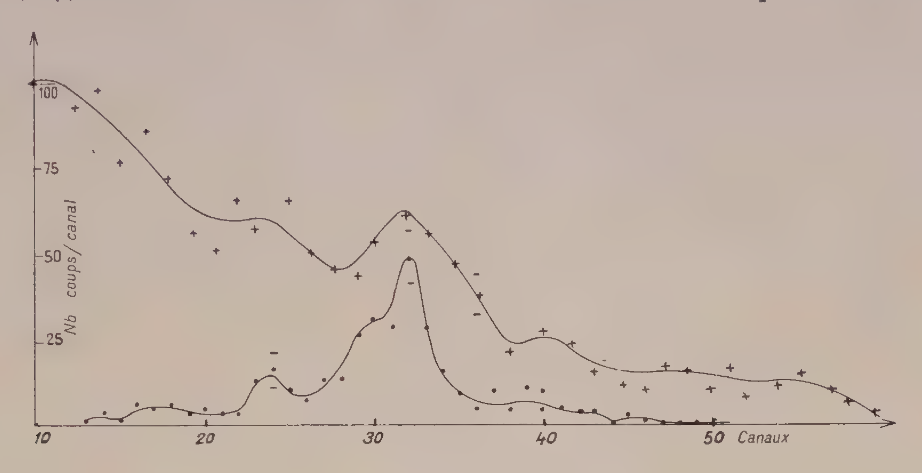


Fig. 15. — Élimination des protons.

Comparaison des spectres obtenus en irradiant du téflon avec et sans sélection de particules en présence d'un bruit de fond de protons important produit par des impuretés sur le support de radiateur.

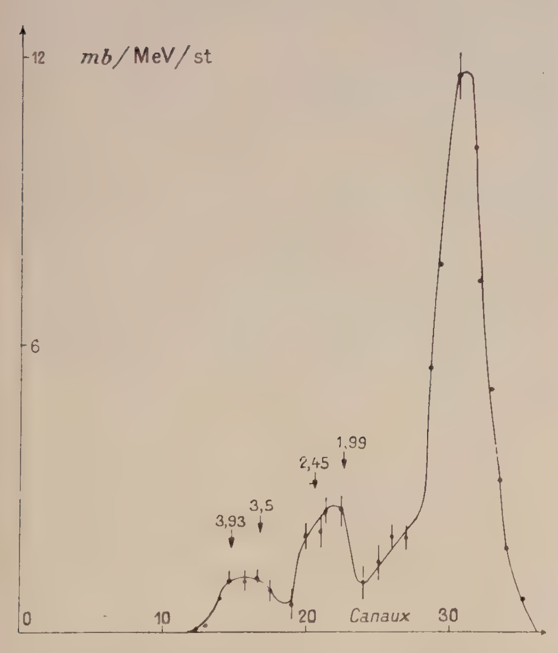


Fig 16. — Spectre des deutons de la réaction $^{19}F(n, d)^{18}O$. Les flèches indiquent, compte tenu de correction de pertes d'énergie dans le compteur et de la non linéarité de l'électronique, les positions du niveau fondamental et des niveaux excités à 1,99 MeV, 2,45, 3,5 et 3,93 MeV.

La figure 16 montre un résultat définitif obtenu au bout de 10 heures d'irradiation (bruit de fond compris). On voit nettement les pics correspondant au niveau fondamental (8,3 MeV) un pic correspond au premier état d'excitation de 1,99 MeV. — Un groupe plus large correspond aux deux niveaux suivant d'excitation 3,5 et 3,93 MeV —. La forme du premier pic à gauche du fondamental semble indiquer qu'il est constitué de la superposition de deux pics, l'un correspondant au premier état excité (1,99 MeV) l'autre au niveau de 2,45 MeV signalé par Holmgren [15].

Si l'on admet pour le fondamental, la répartition angulaire donnée par Ribes et correspondant à $l = 0$, on trouve (compte tenu de l'angle moyen du télescope) une section efficace de 18,8 mb/st ± 8,9 % alors que la valeur trouvée par Ribes [11] serait dans les mêmes conditions de 19,5 mb/st.

N. B. — Ces niveaux excités ne sont pas mis en évidence par Ward.

Le rapport $\dfrac{\sigma\ (1^o + 2^o \text{ niveaux excités})}{\sigma\ (\text{valeur fondamental})} = 1/5{,}6$

valeur largement supérieure à la valeur de Ribes et le rapport $\dfrac{\sigma\ (3^o + 4^o \text{ niveaux excités})}{\sigma\ (\text{niveau fondamental})} = 1/11.$

C) SÉLECTION DES PROTONS. RÉACTIONS DE RUPTURE DU DEUTON. — Les courbes présentées font partie d'une étude en cours sur la réaction n(D 2n)p. Sur la figure 17 on a porté les résultats obtenus

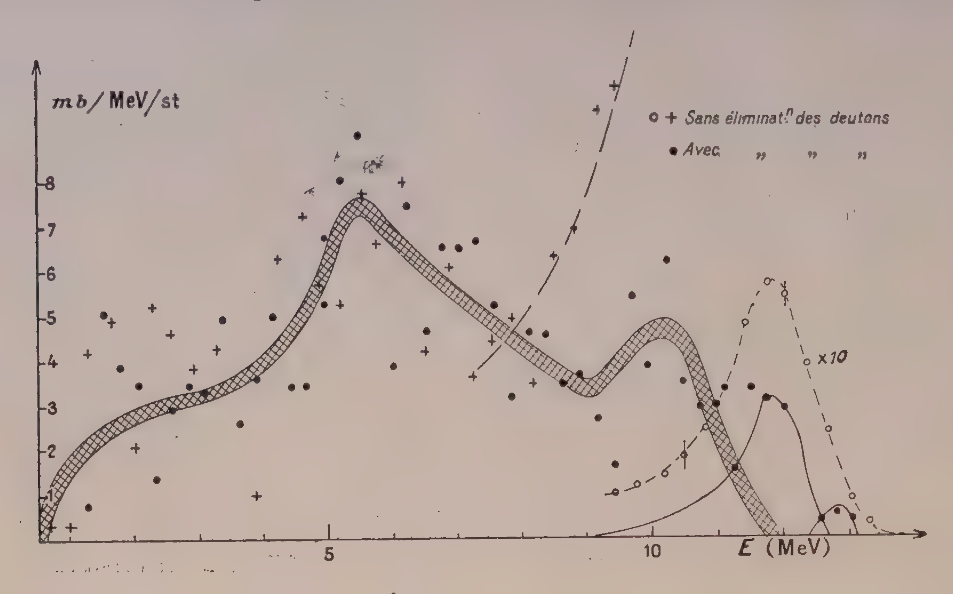


FIG. 17. — Élimination des deutons.

La figure montre superposés les spectres obtenus avec une cible de 6,5 mg/cm² de paraffine lourde avec et sans sélection des deutons. Le télescope étant orienté à 15°, avec ce réglage il reste 5 % de deutons.

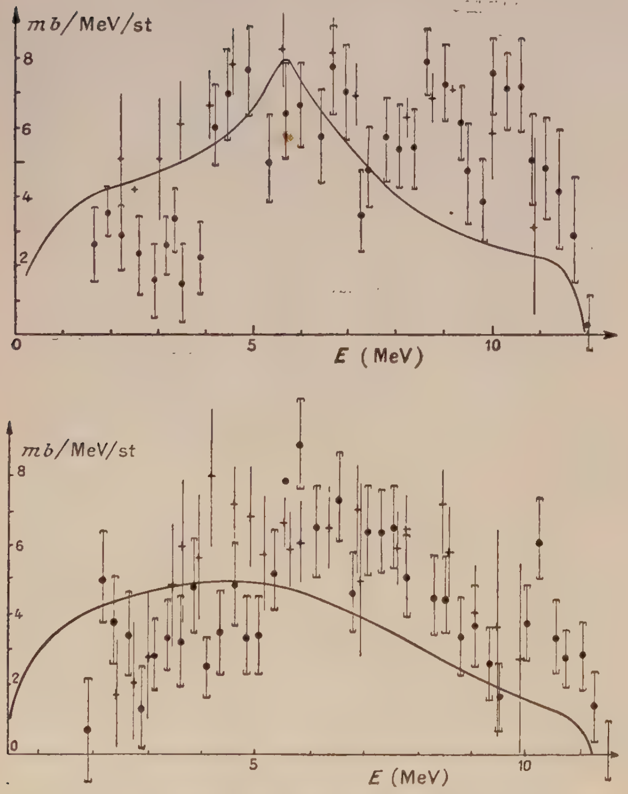


FIG. 18 et 19. — Résultats comparés avec ceux de Seagraves à 5° et 16°5. La courbe en trait plein est la courbe théorique de Franck et Gammel.

Les points correspondent à nos résultats, les croix à ceux de Seagraves.

avec et sans élimination des deutons, le télescope orienté à 15,5° (angle non corrigé). L'analyse de la courbe montre un résidu de 5 % de deutons. Le petit pic à 13 MeV est produit par la faible proportion de paraffine légère présenté dans la paraffine lourde.

Les figures 18, 19 montrent nos résultats aux positions 0° et 15° comparées aux résultats de Seagraves [13] et aux prévisions de Frank et Gammel. Ils correspondent à des irradiations de 4 h 30 bruit de fond compris. Là encore, la méthode permet de gagner en rapidité et en précision. Ces premiers résultats confirment et précisent les désaccords avec la théorie notamment la proportion plus élevée de protons de haute énergie.

On trouve

$$d\sigma/d\Omega(t^0) = 58{,}2 \pm 3{,}3 \qquad d\sigma/d\Omega(16^05) = 45 \pm 1{,}7 \text{ mb/st}$$

Les marges d'erreur pourront être réduites après une pesée plus précise du radiateur et une analyse de la valeur C/D de la paraffine lourde.

Nous tenons à remercier M. Suzor, Ex-Sous-Directeur du Laboratoire de Synthèse Atomique et M. le Pr Magnan, actuel Directeur, pour toutes les facilités qu'ils nous ont accordées.

L'un de nous (P.L.) tient à rappeler tout ce qu'il doit au regretté Pr Joliot-Curie qui lui avait suggéré ce travail.

Manuscrit reçu le 9 mars 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BARSHACK TASCHEK WILLIAMS (Rosen RMP 24.L.1952
[2] JOHNSON et TRAIL, *Rev. Sc. Instr.*, 1956, **27**, 468.
[3] ALLAN (Dl.), *PPS*, 1955, A **68**, 925.
[4] COLLI (L.) et FACCINI (U.), *Nuovo Cimento*, 1956, **4**, 671.
[5] BADONI (C.), COLLI FACCINI, *Nuovo Cimento*, 1957, **5**, 502.
[6] COLLI (L.), FACCINI (U.), IORI (I.), MARCAZZANI (G.) et SONA (A.), Proceedings of the second Internation Conference on Peaceful uses of Atomic Energie (vol. 14, p. 147).
[7] LANDAU, *J. Physics*, U. S. S. R., 1944, **8**, 201.
[8] SYMON, *Thèse*, Harward University, 1948.
[9] IGO EISBERG, *Rev. Sc. Instr.*, 1954, **25**, 452.
[10] ASCHENBRENNER, *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 657.
[11] RIBES (F. L.), *Phys. Rev.*, 1957, **106**, n° 4, 767.
[12] JACK et WARD, *Proc. Phys. Soc.*, 1960, **75**, 833.
[13] SEAGRAVES, *Phys. Rev.*, 1953, **97**, 757.
[14] KUO-PETRAVIC et TURKO, *Nuclear Instrum.*, 1961, **10**, 53.
[15] HOLMGREN et al., *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 241 A.
[16] BAME, HADDAD, PERRY SMITH, *Rev. Sc. Inst.*, 1957, **28**, 997.

REVUE DES LIVRES

EINSTEIN (A.), **Signification de la Relativité. Compléments.** (1 vol. broché de 57 p., 16 × 24 cm, traduit de l'anglais par M. Solovine et M. A. Tonnelat, Gauthier-Villars, Paris, 1960, prix 15 NF.)

Il s'agit des annexes de la dernière édition (1954) du livre « *Signification de la Relativité* ». Ce sont donc les dernières publications du grand savant. L'une est consacrée au problème cosmologique et aux difficultés qu'on rencontre, notamment une durée trop courte pour la vie de l'univers. L'autre à la théorie dissymétrique du champ de gravitation. Einstein donne un formalisme cohérent pour une telle théorie et l'examine en détail.

Dans des réflexions finales, il écarte l'hypothèse de zones de singularité (susceptibles de représenter les corpuscules). Il reste encore, dit-il, à préciser des postulats pour les conditions aux limites. Enfin, c'est à une insufflsance de l'outil mathématique qu'il attribue l'impossibilité actuelle de donner l'expïication de la mécanique quantique.

J. WINTER.

Thermodynamique des processus irréversibles. (Comptes rendus de l'école internationale de physique Enrico-Fermi, réunion de Varenna sul lago di Como, juin 1959), 1 vol. de 320 p., 17 × 25 cm, Zanichelli, Bologne, 1960, prix 3500 Lire. (tous articles en anglais).

Ensemble de leçons traitant les unes des applications, les autres des fondements théoriques des relations de Onsager : 1. KLEIN (M. J.), Les lois de la thermodynamique. 2. MUNSTER (A.), Théorie des fluctuations. 3. DE GROOT, Thermodynamique du déséquilibre. (Ces trois études couvrent plus de la moitié de l'ouvrage et sont consacrées aux fondements théoriques.) 4. FRESCHI (R.), Relations d'Onsager pour les phénomènes vectoriels. 5. MAZUR (P.), Sur les bases statistiques de la thermodynamique du déséquilibre. 6. KLEIN (M. J.), Le principe de la production minimale d'entropie. 7. KIRKWORD (J. G.), Mécanique statistique des phénomènes de transport. 8. MONTROLL (E. W.), Même sujet. 9. HENRI (F.), Processus irréversibles dans les solides. 10. NAKAJIMA (S.), Sur la théorie quantique des processus irréversibles. 11. MAZUR (P.), Sur la théorie statistique mécanique du comportement irréversible. 12. ONSAGER et DUPINO (M.), Propriétés électriques de la glace. (D'après le modèle cristallin de Pernal et Fowler.) 13. CINI CASTAGNOLI et RICCI, Diffusion dans les liquides simples (annoncé)

J. WINTER.

Photographie corpusculaire (Premier colloque international). 1 vol. relié, 451 pages, 250 figures, Publications du C. N. R. S., 1958, 53 NF.

Le premier colloque international de photographie corpusculaire s'est tenu à Strasbourg en juillet 1957. Son but était une mise au point de nos connaissances sur les mécanismes de l'action photographique des particules chargées et l'exposé des résultats obtenus ces dernières années.

Cet ouvrage rassemble les communications faites au colloque sous 8 titres de chapitre :

— L'image latente dans les émulsions ordinaires.
— L'image lantente dans les émulsions corpusculaires.
— Préparation et proptiétés des émulsions.
— Quelques caractéristiques des émulsions corpusculaires soviétiques.
— Traitement des émulsions corpusculaires.
— Méthodologie.
— Applications à d'autres domaines.

En plus des communications assez spécialisées, on trouvera dans ce livre un certain nombre de renseignements généraux et relativement détaillés, notamment sur la sensibilité photographique, la sensibilisation des émulsions et la formation de l'image latente.

N. ZELLER.

DEMERS (Pierre), **Photographie corpusculaire (II)** (1 vol. relié toile bleue, 464 pages, 360 figures.) Les Presses Universitaires de Montréal (Canada) 1959.

Ce livre est le compte rendu du second colloque international de photographie corpusculaire (Montréal, 1958). Il s'agit donc plus d'un recueil de communications sur un certain nombre de points précis que d'une revue d'ensemble. Le plan adopté comporte six parties : 1) *Processus de la lumière et des rayons X.* — 6 communications y traitent de l'action des radiations corpusculaires sur les émulsions, ainsi que de la théorie du développement de l'image latente obtenue. — 2) *Préparation et sensibilisation des émulsions ionographiques.* — Partie importante où sont exposées diverses techniques pour la préparation des émulsions à grains ultra-fins requises pour l'ionographie. La sensibilisation chimique et l'hypersensibilisation à la triéthanolamine sont abondamment traitées. — 3) *Développement.* — Exposition de divers appareillages adaptés au développement des couches épaisses. Diverses communications envisagent l'aspect théorique du gonflement et de la pénétration du révélateur dans ces couches. — 4) *Image latente. Propriétés relatives aux trajectoires.* — Il s'agit des relations entre les trajectoires et les radiations corpusculaires qui les ont engendrées, en particulier discrimination des particules. — 5) *Appareils spécifiques des mesures sur les traces.* — 6) *Applications représentatives.*

N. ZELLER.

OBTENTION DE LIQUIDES POLAIRES IONIQUEMENT PURS

Par Georges BRIERE,
Laboratoire d'Électrostatique et de Physique du Métal,
Faculté des Sciences de Grenoble.

Résumé. — Il est possible d'appliquer aux liquides polaires les méthodes, aujourd'hui très pratiquées, de désionisation des solutions électrolytiques aqueuses par l'emploi de résines synthétiques échangeuses d'ions fortement acides et basiques utilisées conjointement [1].

L'éthanol, liquide très apparenté à l'eau par son grand pouvoir ionisant a permis de montrer comment ce procédé de purification ionique convient aux solvants polaires.

Il semble bien que nous ayions atteint un état voisin de l'ionisation naturelle ; les mesures électrométriques, déjà anciennes, viennent en apporter une confirmation encourageante.

Après avoir décrit les manipulations qui nous ont conduit à mesurer la conductibilité électrique de l'éthanol ioniquement pur, nous tacherons de préciser comment la désionisation peut être envisagée dans le domaine des liquides organiques en général.

Abstract. — It is possible to achieve complete deionization of certain pure polar liquids, as is usually done with aqueous electrolyte solutions, by column operation on a mixed bed of a strong acid anion exchanger and an equivalent quantity of a strongly basic cation exchanger.

By applying this process to ethanol, a liquid very similar to water as regards its great ionizing power, we were able to show how this ionic purification suits equally well to polar solvents.

It seems that a state close to natural ionization was reached : confirmation in support of this is given by alcoholic electrometric measurements.

After a description of the test set up, an attempt is made to generalize the above method to non aqueous media.

I. Introduction et rappel historique. — L'étude des propriétés électriques des liquides est un domaine qui a suscité de nombreux travaux pendant ce demi-siècle dernier mais qui, pourtant, n'a progressé que très peu et manifeste même une régression d'idées dans certaines publications récentes.

D'une manière générale, la spécificité des résultats obtenus ne s'est trouvée vérifiée qu'à propos de l'eau ; les travaux de Kolhrausch (1895) ont permis de déterminer avec précision la constante d'équilibre de l'ionisation de l'eau, hypothèse de Van't Hoff vérifiée ensuite par les mesures électrométriques, et de concevoir ainsi la première théorie des acides et des bases.

Dans tous les autres cas, et quelque soit le liquide étudié, il est impossible de conclure que les valeurs des conductibilités électriques rencontrées sont définitives et reflètent le comportement intrinsèque du liquide.

Distinguons en premier lieu les liquides non polaires ou très peu, dont la permittivité n'atteint pas 5, des liquides polaires et très polaires, pour qui elle atteint et dépasse 20. Pour les premiers, hydrocarbures aliphatiques ou benzéniques tels que l'hexane et le benzène par exemple, il a été démontré que par les procédés de purification vulgaires (déshydratation chimique, distillation et absorption des impuretés par des surfaces actives), il est possible d'atteindre des résistivités bien supérieures à 10^{14} Ωcm et pouvant aller jusqu'à 10^{20}, et qu'alors, l'ohmicité disparaissant, la conductibilité résiduelle est difficilement interprétable (tout processus conduisant à une loi de variation exponentielle du courant avec le champ trouve sa justification dans les données expérimentales : émission froide des électrodes, ionisation des molécules par le champ électrique intense, etc...).

Il ne parait pas utile de faire appel à une ionisation spontanée du liquide, indépendante de toute action extérieure, étant donnée la petitesse des courants minimum limites observés [2].

Le rôle contrôlé de l'eau dans ces liquides a été précisé récemment et une explication de l'influence des pollutions en présence d'eau en a été donnée [3].

Il en va bien différemment pour les liquides diélectriques polaires dont les résistivités obtenues dépassent rarement 10^7 Ωcm et varient selon les auteurs, et pour un même liquide dans des proportions qui jouent sur des puissances de dix !

L'influence des pollutions électrolytiques est dans ce cas prépondérante et la diversité des résultats reflète les différents degrés de purification atteints ainsi que l'influence des procédés employés. C'est là une manifestation du pouvoir ionisant de ces diélectriques, que leur confère une permittivité élevée. La plupart des auteurs, après Walden, faisant l'analogie avec le cas de l'eau admettent une ionisation naturelle responsable du courant mesuré dans ces liquides prétendus purs. Il a même été conclu récemment qu'il est impossible d'attribuer

aux semi-conducteurs liquides tels que l'acétone et le nitrobenzène, une résistance déterminée [4].

Cependant, dès 1914, un expérimentateur soigneux avait atteint des valeurs particulièrement élevées des résistivités de l'acétone et différents alcools, valeurs que les travaux postérieurs semblent ignorer ou mettre en doute, cet auteur fut pourtant le seul à considérer ses résultats comme erronés par défaut ! Il a fallu un demi-siècle pour pouvoir lui donner raison ; en effet, un nouveau moyen de désionisation, bien plus puissant qu'aucun des précédents, est apparu et a révolutionné les techniques de purification et de séparation, tant au laboratoire que dans l'industrie : il s'agit des résines synthétiques échangeuses d'ions qui permettent de produire quotidiennement de l'eau dans un état de pureté comparable à celui obtenu jadis par Kohlrausch après de très nombreuses distillations fractionnées dans un appareillage en silice pure !

Il est aujourd'hui aisé de retrouver une résistivité voisine de 25 MΩcm (à 18 °C) par élution d'une eau ordinaire sur colonne de résines appropriées. L'emploi de ces mêmes résines peut en être fait afin de désioniser des solutions salines dans d'autres liquides, l'échange s'effectue d'autant mieux que le liquide est plus polaire [5]. Il doit montrer, évidemment, une inertie chimique au contact de l'échangeur et celui-ci doit être insoluble dans le liquide d'élution.

Les vitesses d'échange sont cependant moins importantes que dans l'eau et un plus faible écoulement est nécessaire. Il a été montré en 1959 que leur emploi convient aussi à la désionisation de liquides organiques chimiquement purs [6] et qu'alors des concentrations d'ions très faibles peuvent être éliminées. Le choix d'un liquide tel que l'alcool éthylique nous a permis d'en juger l'efficacité, nos conclusions étant fortement étayées par les mesures électrométriques faites sur ce liquide pendant les années 1920-1930. Dans le cas particulier de l'éthanol, il est remarquable de constater, là encore, la grande diversité des résistivités mesurées par les différents auteurs : l'élimination des pollutions était dans tous les cas insuffisante. Dès 1914, Carvallo obtenait après purifications chimiques et distillations fractionnées successives, une valeur de $1{,}1 . 10^8$ Ωcm 17 °C [7]: Ensuite, réapparaissent, citées dans les tables de constantes, des valeurs bien plus faibles pouvant descendre jusqu'à 10^4 Ωcm (alors que la résistivité de l'eau pure est de 25 MΩcm à 18 °C !

Danner et Hildebrand en 1922 trouvent $7{,}4 : 10^8$ Ωcm à 25 °C, la meilleure valeur rencontrée dans la littérature [8]. Cependant les mesures de f. e. m. de piles en milieu alcoolique font prévoir par le calcul de la constante d'ionisation, des résistivités 50 à 100 fois plus élevées.

Nous sommes parvenus à obtenir une concordance satisfaisante avec les données de l'électrométrie, montrant ainsi que les échangeurs d'ions sont un moyen puissant d'élimination d'impuretés, même dans des solvants autres que l'eau et à des concentrations extrêmement faibles.

II. **Calcul de la conductibilité électrique limite des liquides ionisés : cas de l'éthanol.** — Il est possible de calculer la conductibilité électrique limite de l'éthanol sans qu'il soit nécessaire d'effectuer des mesures sur le liquide totalement privé d'ions étrangers, pour cela deux données expérimentales sont nécessaires : La mobilité u des protons et des ions ethylates dans l'alcool ; le produit ionique K (ou constante de dissociation) de la réaction équilibrée, d'ionisation du liquide.

Ces deux valeurs s'obtiennent par extrapolation à des concentrations nulle des séries de mesures faites en présence de quantités notables et connues, d'ions introduits et devant lesquelles les pollutions peuvent être négligées.

Nous disposons des données nécessaires au calcul de σ_l, à 25° :

$$\Lambda_0, C_2H_5OH = 83 \pm 5 \ \Omega^{-1}\ \mathrm{cm}^{-1} \text{ par mole/kg,}$$

et

$$4{,}2 . 10^{-20} \leqslant K_{C_2H_5OH} \leqslant 15 . 10^{-20}.$$

Si nous posons $\alpha = \Lambda / \Lambda_0$, égal à la fraction de moles dissociées ou taux d'ionisation :

$$K = \alpha^2 . \gamma_{C_2H_5O^-} . \gamma_{H^+} \# \alpha^2,$$

la conductibilité limite de l'éthanol est alors donnée par :

$$1/\sigma_l = \frac{1\,000}{\alpha . \Lambda_0} \# \frac{1\,000}{\sqrt{K} . \Lambda_0} = \rho_l,$$

soit

$$1{,}6 . 10^{-5} \leqslant \sigma_{C_2H_5OH} \leqslant 3{,}4 . 10^{-5}\ \mu\Omega^{-1}\ \mathrm{cm}^{-1},$$

et

$$29.400 \leqslant \rho_{C_2H_5OH} \leqslant 62.500\ \mathrm{M\Omega\ cm}.$$

TABLEAU 1

	$\Lambda_{0(\text{à } 25°)}$ $\Omega^{-1}.\mathrm{cm}^{-1}$	K AUTOPROTOLYSE	σ_l $\mu\Omega^{-1}.\mathrm{cm}^{-1}$ CALCULÉE	ρ_l MΩ × cm CALCULÉE	ε (à 25°)
H_2O	$\Lambda_0\ OH^- = 198$; $\Lambda_0\ H^+ = 350$; $\Lambda_0 = 548$	$1{,}01 . 10^{-14}$	$5{,}48 . 10^{-2}$	18,25 MΩ cm	78,5
CH_3OH	$\Lambda_0\ CH_3O^- = 52$; $\Lambda_0\ H^+ = 142$; $\Lambda_0 = 194$	$1{,}4 . 10^{-17}$	$7{,}25 . 10^{-4}$	1 280 MΩ cm	31,5
C_2H_5OH	$\Lambda_0\ C_2H_5OH = 83 \pm 5\ \Omega^{-1}.\mathrm{cm}^{-1}$ par mole/kg.	4,2 à $15 . 10^{-20}$	1,6 à $3{,}4 . 10^{-5}$	29,4 à $62{,}5 . 10^3$ MΩ cm	24,3

Notons qu'un calcul analogue peut être fait à propos de l'alcool méthylique, liquide apparenté aussi bien à l'eau qu'à l'alcool éthylique ; à titre comparatif nous donnons dans le tableau 1, p. 501 les valeurs qui nous intéressent ici pour ces trois liquides :

III. **Obtention d'éthanol ioniquement pur, par l'emploi d'échangeurs d'ions.** — Nous allons décrire maintenant les moyens qui nous ont permis d'atteindre un état de pureté ionique, dans l'éthanol, tel qu'une résistivité effectivement mesurable a été trouvée, en accord remarquable avec le calcul précédent. Pour alléger la suite de cet exposé, nous insisterons plus sur les manipulations qui permettent dès à présent de reproduire un tel état, plutôt que sur l'historique de nos expériences.

1) **Déshydratation de l'éthanol.** — Nous avons utilisé au cours de notre travail, de l'alcool « absolu », Prolabo R. P., chimiquement pur et dont la teneur en eau est variable et oscille entre 500 et 1 500 10^{-6} (p. p. m.) à la livraison.

Si l'on tente une évaluation de la conductibilité due à cette eau parasite [9], en appliquant la loi d'action de masse à la dissociation de l'eau dans l'alcool, on obtient en fonction de la concentration d'eau, la résistivité du mélange privé d'ions :

100 %	1 %	100.10^{-6}	1.10^{-6}
10^7	10^8	10^9	10^{10} Ω cm

D'une manière plus précise on trouve pour 1 000 p. p. m. d'eau à 25°, une résistivité maximum de :

$$\rho \# \frac{10^{+7} \times 1\,000}{100} \times \sqrt{10^3} \# 3\,200 \text{ M}\Omega\text{cm},$$

en admettant que la mobilité de l'ion OH^- est du même ordre que celle des autres ions monovalents dans l'éthanol (Λ_0, H_0 O # 100). En fait, au cours des premiers essais de désionisation sur résine, une telle résistivité a pu être dépassée avec de l'alcool contenant environ 5 % d'eau ! Ce qui montre bien, d'une part le rôle du solvant dans l'ionisation des corps dissous, d'autre part, que les mesures antérieures devaient être faussées par les pollutions résiduelles que contenait l'éthanol après déshydratation chimique et distillation, et non par l'humidité restante.

L'emploi de résines synthétiques échangeuses d'ions a nécessité cependant un dispositif de déshydratation énergique (et consommant peu d'alcool), car l'échangeur lui-même contient environ 50 % d'eau de constitution qu'il ne cède que lentement au liquide effluent.

De l'alcool « absolu » (à ∼ 1 000 p. p. m. d'eau) recyclé constamment sur résine se charge d'une teneur maximum limite de quelques % lorsque la résine est neuve, puis par suite de la compétition entre les affinités réciproques de la résine et de l'alcool à la fixation d'eau, cette teneur maximum décroit elle-même progressivement, sans devenir nulle pour autant, lorsque l'on renouvelle par de l'alcool sec, (les mesures sont faites par la méthode de Karl Fischer).

Il nous a été nécessaire de disposer de 30 litres environ, d'alcool absolu, pour déshydrater 500 g de résine humide, l'alcool d'élution ne contenant plus à la fin que 1 500 p. p. m. d'eau, après un recyclage prolongé. Les tamis moléculaires sont un moyen indispensable au séchage en courant liquide continu. Leur efficacité permet d'atteindre, dans l'alcool éthylique des teneurs en eau de l'ordre de 10 p. p. m., et pour des quantités notables de liquide. Nous avons employé des tamis « Linde », type 4 A en batonnets de 1/16 inch, qui possèdent un réseau cubique d'alumino-silicate de sodium ou de calcium absorbant préférentiellement les molécules dissymétriques, petites et polaires comme celles de l'eau. On peut dessécher théoriquement 8 l d'éthanol (contenant 500 p. p. m. d'eau) à moins de 50 p. p. m., si l'on dispose d'un kg de tamis mis en colonne verticale. Le liquide doit circuler très lentement dans le sens ascendant avec un débit de quelques cm³ par minute.

Les colonnes employées étaient en Pyrex, longueur : 130 cm, diamètre intérieur : 30 mm, elles contenaient ainsi environ 800 g d'absorbant ; un dispositif de régénération constitué par une gaine électrique chauffante, porte le tamis à une température comprise entre 200 et 300 °C, sous courant d'azote sec.

Le schéma général de l'installation est donné plus loin à propos de la désionisation. Notons seulement que la circulation est assurée par la pompe utilisée au recyclage sur résine, son débit étant réglable et compris entre 0 et 12 litres-heure.

L'alcool, à la sortie du tamis, se trouve chargé d'une poussière colloïdale de silicate que l'on élimine par distillation, afin de ne pas saturer par la suite les groupes actifs de l'échangeur.

Dans notre montage nous avons obtenu au cours d'un seul cycle, après regénération totale du desséchant, 5 à 8 l d'alcool contenant 200 p. p. m. d'eau en moyenne, en partant d'alcool « absolu » à 1 000 p. p. m. environ. Un recyclage de cet alcool sur tamis renouvelé, pourrait conduire à une teneur en eau inférieure à 50 p. p. m. En fait, la limitation est venue de la résine qui cède son eau constamment à l'alcool effluent, et de moins en moins facilement.

2° **Désionisation en milieu alcoolique.** — La désionisation dans les solvants organiques polaires avait fait l'objet de travaux expérimentaux, uniquement dans le cas de fortes concentrations d'électrolytes introduits dans un liquide donné, et dont

on dosait la quantité disparue après élution sur résines à différentes vitesses d'écoulement (10). L'efficacité des résines était donc, mesurée par simple analyse volumétrique. Dans le domaine qui nous intéresse, seules les mesures électriques sont sensibles à des concentrations d'ions aussi faibles que 10^{-10} ions-grammes/kg, nous avons suivi le degré de purification du liquide traité par conductimétrie, dans la cellule même où la conductivité limite devait être mesurée.

Notons un fait essentiel qui permet de juger combien est prépondérant le rôle des pollutions, toute modification des raccords entre la sortie de la résine et la cellule exige ensuite une longue période de lavage (parfois plusieurs journées). Le courant liquide entraîne peu à peu les impuretés situées sur les surfaces qu'il baigne. A l'arrêt, le liquide se pollue par simple solubilisation du verre ; pour les mêmes raisons, un essai de mesure avec des électrodes de platine platiné à montré que le temps de lavage devient très long (15 jours ne suffisent pas !), les impuretés ioniques occluses dans le platinage ne sont libérées que très lentement dans le courant liquide et faussent toute mesure.

a) Désionisation sur résines, a la température ordinaire. — La désionisation, ainsi qu'il a été dit précédemment, se fait par élution du liquide sur un lit de résine constitué d'un mélange en parties égales d'échangeur de cations (fortement acide) et d'échangeur d'anions (fortement basique). En effet, pour une meilleure utilisation des groupes actifs, le liquide à purifier doit être en contact avec les deux variétés acides et basiques afin que le PH moyen reste voisin de la neutralité. De plus il est certain que les radicaux fonctionnels de l'échangeur doivent posséder une fonction (acide ou base) forte si l'on veut aboutir à une désionisation pratiquement totale. Nous avons employé indifféremment les résines américaines Amberlite IR. 120 et IR. 400 et les résines allemandes Merck I et III. Les variétés acides sont des dérivées polymérisés du polystyrol (ou polystyrène), porteurs de groupes actifs sulfoniques substitués, les variétés basiques sont des polyamines substituées en ammonium quaternaire. On admet que l'échange s'effectue, dans l'eau, selon l'équation de principe :

$$R\ \ SO_3H + ClNa \rightleftarrows RSO_3Na + ClH,$$

$$(R)_4NOH + ClNa \rightleftarrows (R)_4NCl + NaOH.$$

Le radical R étant hautement insoluble dans la plupart des solvants ordinaires. Le groupe sulfonique libère des protons en absorbant les cations et le groupe aminé libère des ions hydroxyle en absorbant les anions : au total il y a bien échange équimoléculaire entre l'impureté saline (supposée ici mono-monovalente) et l'eau dans la solution.

L'équation d'équilibre citée plus haut laisse supposer que l'échange s'effectue selon la loi d'action de masse mais l'hypothèse d'une absorption (pouvant être irréversible à de très faibles concentrations) a été proposée par certains auteurs (11).

1) *Appareillage.* — Nous allons décrire brièvement le montage effectué.

Schéma. — L'échange est opéré en circuit fermé, construit entièrement en Pyrex : le liquide à désioniser passe sur le lit de résine contenu dans une colonne (longueur : 80 cm, diamètre : 35 mm) munie à sa partie supérieure d'une réserve de 600 cm³, il traverse ensuite un serpentin situé dans un réchauffeur dont la température est thermostatée, avant de pénétrer dans la cellule de mesure, il est enfin recyclé vers la réserve de la colonne.

Dans nos dernières manipulations, la totalité de la colonne de résine était à double paroi et pouvait être portée à la température désirée par une circulation auxiliaire de liquide. Nous justifierons plus loin ce montage.

La pompe qui assure la circulation continue de l'alcool, à vitesse controlable, doit apporter le moins possible de pollutions dans le liquide : un modèle, type Vary Pump à membrane, dont le corps de pompe et les clapets sont entièrement en Téflon, s'est montré très satisfaisant. Des cellules de contrôle ont été réparties le long du circuit (avant et après la pompe en particulier) pour en juger. Le liquide est donc à l'abri de l'atmosphère sur la totalité du cycle, il ne prend contact qu'avec le pyrex, verre dur, hautement insoluble, le téflon, polymère inerte à l'action des solvants, et le métal des électrodes.

Le schéma donne l'allure des opérations successives. Tous les raccords entre les différentes parties du montage sont assurés par des rodages sphériques en pyrex, les connections vers la pompe étant en tube téflon.

2) *Résultats expérimentaux.* — De l'alcool éthylique ordinaire, contenant plus de 5 % d'eau, après circulation sur un lit de résine haut de 50 cm, et recyclé à une vitesse de 6 litres-heure, passe d'une résistivité initiale voisine de 2 MΩcm à une résistivité de 3 500 MΩcm, en une semaine, courbe 1 — Log $\rho = f(t)$. La résine est, au préalable, mise à macérer dans de l'alcool 96°, afin de lui oter la majeure partie de son eau. La colonne de résine et la cellule de mesure sont alors à température ordinaire (25 °C environ). La loi d'Ohm se trouve vérifiée pour des champs électriques compris entre 0 et 2 000 V/cm, même dans une cellule conductimétrique ayant des tiges de métal pour électrodes. Des électrodes planes et parallèles donnent une linéarité aux courbes $I = f(V)$ jusqu'à des champs de 4 000 V/cm.

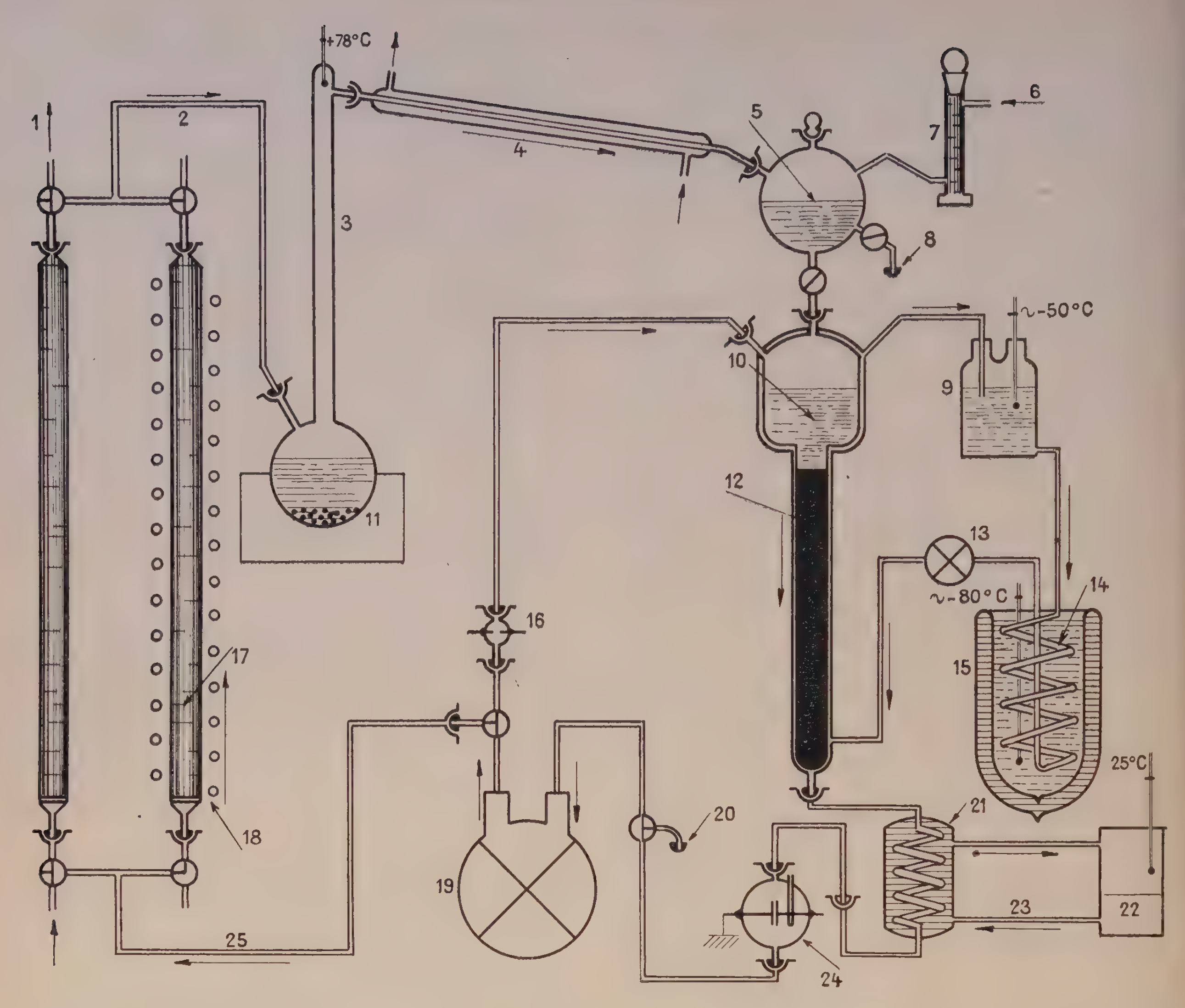


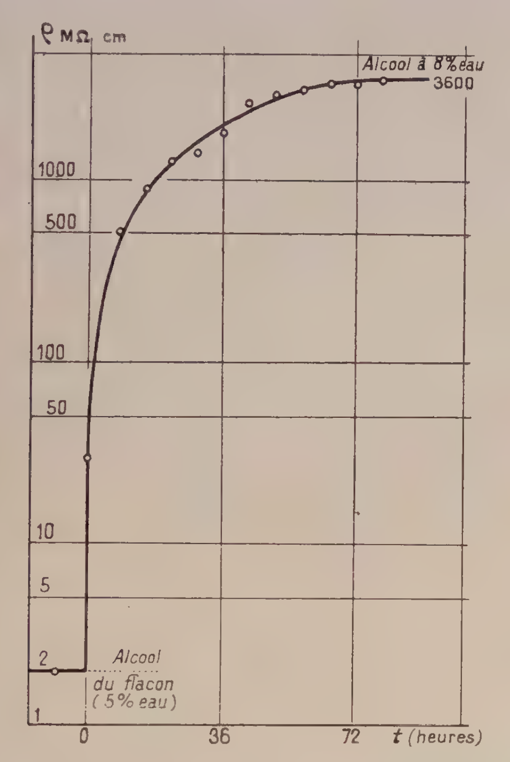
SCHÉMA. — 1 : courant d'azote sec. — 2 : Alcool sec chargé de tamis. — 3 : colonne à distiller. — 4 : Réfrigérant à eau. — 5 : Réserve d'alcool déshydraté. — 6 : entrée d'air. — 7 : dessicateur à silicagel. — 8 : prise d'alcool déshydraté. — 9 : réserve d'alcool (96°) refroidi venant de la double paroi. — 10 : Réserve d'alcool pur désionisé. — 11 : chauffe-ballon. — 12 : Colonne de résines échangeuses d'ions (entièrement calorifugée). — 13 : Pompe centrifuge. — 14 : Serpentin de cuivre. — 15 : Vase Dewar (acétone + CO_2 sol.). — 16 : Cellule de contrôle. — 17 : Colonnes de tamis moléculaires. — 18 : Dispositif de régénération à 300 °C. — 19 : Pompe en téflon « Vary Pump ». — 20 : Prise d'alcool pur. — 21 : Serpentin réchauffeur (en pyrex). — 22 : Thermostat. — 23 : Circulation d'eau. — 24 : Cellule conductimétrique. — 25 : Alcool hydraté par l'échangeur.

Notons d'ores et déjà, que la diminution du courant mesuré, ne se fait que très lentement tant que le circuit n'est pas entièrement nettoyé et qu'un arrêt de la circulation en provoque une remontée au bout de quelques minutes au plus, parfois quelques dizaines de secondes. Il y a là, une preuve de l'importance relative des pollutions venant des parois et des surfaces en contact avec le liquide pur sortant de la résine.

— La mise en service d'une colonne plus longue (80 cm) et de résine neuve met en évidence la libération progressive d'eau dans l'alcool contenant au départ 5 % d'eau ; on remplace l'alcool hydraté par l'azéotrope obtenu après simple distillation, lorsque le courant tend vers une limite ; chaque fois la limite du courant est abaissée (courbe 2 $\log \rho = f(t)$). Lors du renouvellement on constate une brusque diminution. Pour chaque palier, on note la résistivité limite atteinte, elle est fonction (décroissante) de la densité de l'alcool sortant.

b) EXCLUSION D'IONS DANS L'ÉTHANOL ET RÔLE DU FROID DANS LA DÉSIONISATION EN MILIEU ALCOOLIQUE. — Notre montage a permis de prouver le rôle efficace du froid sur l'activité de la résine. A cet effet, nous avons fait circuler dans

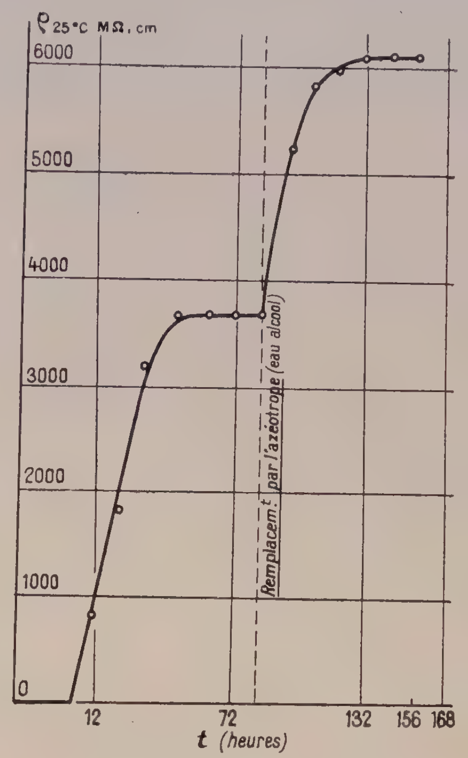
la double paroi de la colonne d'échange, de l'alcool refroidi après passage dans un serpentin de cuivre, lui-même plongé dans un vase Dewar contenant un mélange eutectique acétone-neige carbonique ($\theta \sim -80$ °C). La température du liquide réfrigérant, après l'échange thermique, permet de fixer une valeur maximale de la température du lit de résine. La circulation (assurée par une pompe centrifuge, Prolabo, à fort débit : 100 à 500 litres/heure) a été effectuée de bas en haut dans la colonne, afin que le liquide à désioniser soit en contact avec la partie la plus froide du lit d'échangeur avant de pénétrer dans le réchauffeur.



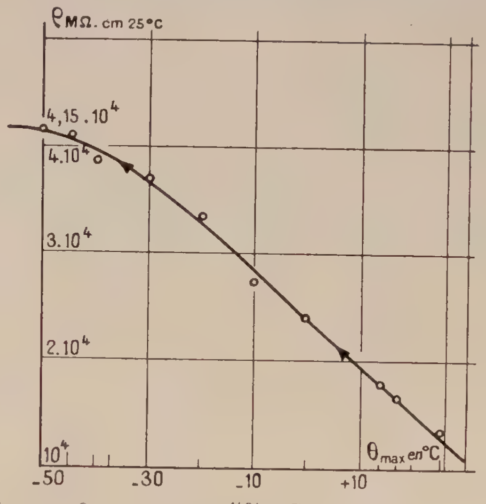
COURBE 1. — $\rho_{25°C} = f(t)$ sous E = 1 000 V/cm

L'ensemble de l'appareillage (cellule de mesure exceptée) étant à la température ambiaute ($\theta - 18$ °C) la résistivité de l'éthanol à 25 °C, n'a jamais dépassé 15 000 MΩcm, quelque soit le degré de déshydratation de l'alcool effluent (pourtant aussi faible que 500 p. p. m.). Par contre, et pour une teneur en eau constante, la résistivité croit avec l'abaissement de température de l'échangeur, on relève ainsi pour différentes températures les valeurs ρ, 25 °C $= f$ (θ résine), courbe 3. L'allure asymptotique des courbes obtenues semble montrer que l'éthanol se trouve dans un état ioniquement pur et que la résistivité mesurée alors est celle due à l'ionisation spontanée du liquide.

La valeur de la résistivité naturelle limite de l'éthanol, serait, en extrapolant à une concentration en eau nulle, voisine de 45 000 MΩcm à 25 °C. Notons que la plus proche valeur, effectivement mesurée est de 43 500 MΩcm, l'alcool ne conte-



COURBE 2. — $\rho_{25°C} = f(t)$ sous E = 1 000 V/cm.



COURBE 3. — $\rho_{25°C} = f(\theta)$ C_{eau} = 600 p. p. m.

nant plus alors que 500 p. p. m. d'eau. Cette résistivité se conserve, indépendamment de la nature du métal des électrodes, sous des champs faibles allant de 50 à 1000 V/cm.

Pour des champs plus intenses, le courant croit plus vite que la tension mais une étude de cette variation nécessiterait l'emploi d'électrodes épaisses

à bords arrondis, de manière à éviter les effets de pointe sur les angles aigus. Il est remarquable cependant de constater que la linéarité des courbes I, 25 °C $= f(E)$ disparait pour des champs d'autant plus faibles que le liquide est plus résistant.

Les variations de la conductibilité limite, ont été mesurées en fonction de la température de l'éthanol lui-même (la résine étant toujours maintenue dans les conditions d'efficacité optimum), entre 20 et 30 °C, la conductibilité est multipliée par un facteur 1,6 environ. Dans le cas de l'eau pure, il est de 1,84, ce qui correspond bien à une énergie d'ionisation de l'alcool, très supérieure à celle de l'eau.

Conclusion. — En résumé, la désionisation en milieu alcoolique, sur échangeurs synthétiques, est efficace quelque soit le degré d'hydratation de l'alcool employé. Il est aisé d'atteindre une résistivité de quelques milliers de mégohms-cm, avec de l'alcool à 96° et une résine neuve n'ayant subi aucun traitement préalable.

Sur une résine longuement déshydratée, et à température ordinaire, l'alcool « absolu » du commerce conduit à une résistivité comprise entre 10 000 et 15 000 MΩcm.

La résistivité naturelle, voisine de 50 000 MΩcm, ne peut être approchée avec les résines mentionnées, qu'à des températures d'échange, inférieures à — 50 °C ; s'il est possible que d'autres variétés de résines plus actives puissent conduire plus aisément à de telles valeurs, l'action du froid n'en reste pas moins utile, voire indispensable à de tels résultats.

Il apparait donc que la distillation est un moyen de purification ionique insuffisant dans le cas de liquides très polaires, peu ionisés naturellement. Deux causes viennent en limiter l'action : d'une part, la solubilité des parois de l'appareil (rappelons que les concentrations ioniques détectées sont de l'ordre de 10^{-10} ion.g/kg dans l'alcool ioniquement pur), d'autre part l'entrainement, lors de la distillation de gouttelettes liquides, dispersées dans la phase vapeur et contenant des impuretés ioniques dissoutes. L'échange sur résines assure une désionisation pratiquement totale et de plus, l'écoulement du liquide pur permet de lutter contre la diffusion des particules solubles issues des parois : il s'agit d'une purification dynamique. Notons avant de conclure, ce fait remarquable : l'alcool éthylique ayant été purifié ainsi qu'il a été dit voit sa résistivité décroitre lentement de 50 000 à 500 MΩcm environ, après quelques heures d'arrêt total de la circulation, or, c'est précisément une telle valeur qui n'a jamais pu être dépassée par les procédés habituels.

D'une manière plus générale, il est permis de penser que les échangeurs d'ions doivent conduire à des résultats semblables avec la plupart des liquides organiques polaires. Des résistivités élevées ont déjà été obtenues avec l'éther, l'acétone et le nitrobenzène. Le rôle de l'eau est, dans tous les cas, prépondérant et les modalités de l'échange en milieu alcoolique nous seront d'un enseignement précieux pour une étude plus étendue des propriétés des diélectriques liquides.

Manuscrit reçu le 15 avril 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Brière (G.) et Felici (N.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **251**, 1004.
[2] Lewis (T. J.), Progress in dielectrics. The electric strength and high-field conductivity of dielectric liquids, 1959, **1**, 99.
[3] Felici (N.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **251**, 953.
[4] Eck, *Ann. Physique*, 12e série, 1949, **4**, 37.
[5] Kunin (R.), Ion exchange résins, 1958, 315.
[6] Felici (N.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **249**, 654.
[7] Carvallo (J.), *Ann. Physique*, 9e série, 1914, **2**, 210.
[8] Danner et Hildebrand, *J. Amer. Chem. Soc.*, 1922, **44**, 2824.
Danner, *J. Amer. Chem. Soc.*, 1922, **44**, 2832.
[9] Felici (N.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **250**, 3960.
[10] Bodamer et Kunin, *Ind. Eng. Chem.*, 1953, **45**, 2577.

EFFETS A GRANDE DISTANCE DANS LA STRUCTURE ÉLECTRONIQUE DES IMPURETÉS DANS LES MÉTAUX

Par ANDRÉ BLANDIN,
Service de Physique des solides (BP. 11), Orsay (S.-et-O.).

Résumé. — L'étude de la structure électronique des impuretés dans les métaux met en évidence l'existence d'oscillations de densité électronique se comportant à grande distance en cos $(2k_F\,r + \varphi)/r^3$, dans l'approximation des électrons libres L'introduction du réseau périodique permet d'étendre ces résultats au cas d'électrons de Bloch. Enfin, on discute l'influence de l'interaction coulombienne sur les propriétés de l'écran et les oscillations de densité électronique.

Abstract. — Studying the electronic structure of impuretes in metals, we point out the existence of electronic density oscillations behaving at large distance as cos $2\,k_F r/r^3$ (in the free electron approximation). These results are generalized for Bloch electrons. We study then the influence of Coulomb interactions on the screening and the charge oscillations.

Introduction. — L'objet de cet article est une étude détaillée des propriétés à grande distance de l'écran, autour d'une impureté de substitution dans un métal.

En dérivant la règle de Friedel [1] (pour des électrons libres) on peut voir qu'il existe, en dehors de l'écran électronique concentré autour de l'impureté, de petites variations de densité électronique à grande distance oscillant avec un vecteur d'onde $2k_F$ et décroissant en r^{-3}. Ces effets à grande distance ont été introduits avec succès dans l'explication de certaines observations expérimentales :

a) *Le couplage indirect entre spins nucléaires* : Pour expliquer les largeurs de raies observées dans la résonance magnétique nucléaire des métaux purs, Ruderman et Kittel [2] ont montré l'existence d'un couplage d'échange entre spins nucléaires par l'intermédiaire des électrons de conduction de la forme :

$$A_1\,A_2\,f(2k_F\,r)\,I_1.I_2$$

où A_1 et A_2 sont les constantes de couplage hyperfin des noyaux 1 et 2 et

$$f(x) = \frac{x\cos x - \sin x}{x^4}.$$

Ce résultat peut être interprété de la manière suivante : le spin nucléaire I_1 polarise la bande de conduction (ici, il s'agit d'une polarisation de spin). Le spin nucléaire I_2 interagit par interaction de contact avec la polarisation créée, qui se comporte à grande distance comme cos $2k_F\,r/r^3$.

b) *La variation du déplacement de Knight dans les alliages* : La variation du déplacement de Knight dans les alliages dilués est expliquée par le changement de densité électronique $\Delta\rho^F(r)$ à la distance r et au niveau de Fermi [3] [4]. Pour grand r :

$$\Delta\rho^F(r) \propto \sin\frac{(2k_F\,r + \varphi)}{r^2}.$$

(La décroissance en r^{-2} est due au fait que, dans ce cas, on ne s'intéresse pas à la variation *totale* de densité électronique, mais uniquement à la variation créée par les électrons au *niveau de Fermi*.)

c) *Les effets quadrupolaires dans les alliages dilués* : Les fortes variations de l'intensité des raies de résonance magnétique nucléaire dans les alliages dilués ont été interprétées [5], [6] par l'interaction du moment quadrupolaire Q des noyaux de la matrice et des gradients de champ créés par les impuretés à grande distance. Les gradients de champ sont essentiellement dus aux oscillations de charge, mais, dans ce cas, l'influence de la matrice (et du potentiel périodique) est importante.

Les trois exemples ci-dessus montrent l'intérêt d'une étude systématique des effets à grande distance autour d'une impureté dans un métal. Nous nous placerons dans le cas d'une impureté de substitution et ne nous intéresserons qu'aux impuretés normales (Zn dans Cu par exemple), en excluant les impuretés pour lesquelles les phénomènes d'échange prédominent (impuretés de transition Mn ou Fe dans Cu par exemple).

Dans la première section, nous simplifions le problème au cas d'*électrons libres* (c'est-à-dire non soumis à un potentiel périodique) perturbés par une charge ponctuelle Z. L'approximation de Hartree des électrons indépendants permet de décrire le système par un potentiel à un électron représentant l'ensemble des effets de la charge centrale Z et de

son écran sur le mouvement d'un électron. Nous en déduisons l'existence d'effets à grande distance. La deuxième section étend ces résultats au cas d'électrons de Bloch, soumis à un potentiel périodique. Enfin, la troisième partie justifie ces résultats : nous montrons comment les caractéristiques de l'écran sont liées aux propriétés de la constante diélectrique du milieu. L'influence de l'interaction coulombienne entre électrons ne modifie pas sensiblement les oscillations à grande distance.

A. La méthode de Hartree (pour des électrons libres). — Cette approximation décrit le mouvement d'électrons indépendants. L'effet global d'une charge ponctuelle Z et de son écran est alors représenté par un potentiel $V(r)$ ne possédant pas de terme coulombien à grande distance. Nous ne connaissons pas en détail les propriétés de $V(r)$, mais Friedel [1] a démontré que le potentiel $V(r)$ doit satisfaire une condition de self-consistance :

$$Z = \frac{2}{\pi} \Sigma (2l + 1)\, \eta_l(E_F) \qquad (1)$$

où les $\eta_l(E_F)$ sont les déphasages créés par le potentiel $V(r)$ et décrivant la diffusion au niveau de Fermi. Une seconde condition doit être imposée à $V(r)$: que le rayon moyen d'action soit de l'ordre de grandeur du paramètre de Thomas-Fermi λ tel que $\lambda^2 = 4k_F/\pi$.

Ces deux conditions semblent donner un large choix de $V(r)$, mais pratiquement seuls les déphasages $\eta_0(E)$ $\eta_1(E)$ sont différents de zéro de manière appréciable. En imposant deux conditions, η_0 et η_1 sont déterminés et les propriétés à assez grande distance de $V(r)$, ne dépendant que des déphasages, sont peu sensibles au choix de $V(r)$.

Regardons maintenant la variation de densité électronique à grande distance de l'origine (les résultats présentés ci-dessous ne sont pas nouveaux ; nous en présentons une démonstration par ondes progressives qui nous sera utile par la suite — cf. électrons de Bloch —).

La fonction d'onde décrivant la diffusion vers l'avant d'un électron du vecteur d'onde k et d'énergie $E = k^2/2$.

$$\Psi_k^+ = V^{1/2}[e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} + g_k(r)].$$

La variation de densité électronique par unité d'énergie est alors (en tenant compte des deux directions de spins) :

$$\Delta\rho_k(r) = \frac{2k}{(2\pi)^4} \int [g_k(r)\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + cc + |g_k(r)|^2]\, d\Omega \qquad (2)$$

et le changement total de densité électronique est obtenu en sommant (2) dans la bande jusqu'au niveau de Fermi :

$$\Delta\rho(r) = \int_0^{k_F} \Delta\rho_k(r)\, k\, dk. \qquad (3)$$

On voit sur les expressions (2) et (3) que le calcul de la densité à l'origine dépend du calcul détaillé des fonctions d'onde. Daniel [4] a montré que la densité totale, ou par unité d'énergie, était finie à l'origine.

A grande distance de l'origine, nous pouvons calculer la forme asymptotique de (2) et (3) :

$$g_k(r) = f_k^+(\theta)\, e^{ikr}/r$$

où $f_k^+(\theta)$ est l'amplitude de diffusion vers l'avant.

Alors $\Delta\rho_k(r)$ prend la forme après intégration par parties et en conservant le terme principal :

$$\Delta\rho_k(r) \simeq \frac{k}{4\pi^3} \Big[\frac{2\pi f_k^+(\pi)}{ikr^2} + cc - \frac{2\pi f_k^+(0)}{ikr^2} - c + \frac{1}{r^2} \int |f_k^+(\theta)|\, d\Omega \Big]$$

que nous pouvons simplifier en utilisant le théorème optique [7] :

$$\int |f_k^+(\theta)|^2\, d\Omega = \frac{4\pi}{ki}\, Im f_k^+(0).$$

Il vient :

$$\Delta\rho_k(r) \simeq \frac{f_k^+(\pi)\, e^{2ikr} + cc}{2\pi\, ir^2}.$$

Cette expression ne dépend que de l'amplitude de diffusion vers l'arrière et peut être écrite en utilisant la relation donnant l'amplitude de diffusion en fonction des déphasages :

$$f_k^+(\theta) = \frac{1}{2ik} \sum_l (2l + 1)\, [e^{2i\eta_l(E)} - 1]\, P_l(\cos\theta)$$

$$\Delta\rho_k(r) = + \frac{\alpha}{\pi^2\, kr^2} \sin(2kr + \varphi) \qquad (5)$$

où α et φ sont déterminés par :

$$\begin{cases} \alpha \sin\varphi = \Sigma (-)^l\, (2l + 1) \sin^2 \eta_l(E) & (6) \\ \alpha \cos\varphi = \frac{1}{2} \Sigma (-)^l\, (2l + 1) \sin 2\eta_l(E). \end{cases}$$

Le terme principal du changement total de densité électronique est donné par intégration par parties :

$$\Delta\rho(r) = - \frac{k_F}{4\pi^2\, r^3} [f_k^+(\pi)\, e^{2ik_F r} + cc]$$

$$= - \frac{\alpha_F}{2\pi^2\, r^3} \cos(2k_F\, r + \varphi_F) \qquad (7)$$

où α_F et φ_F sont pris maintenant au niveau de Fermi.

Nous avons ainsi une description de l'écran qui a les propriétés suivantes :

1. La charge électronique d'écran est égale à Z (en satisfaisant la règle de Friedel) ce qui assure

l'absence de terme coulombien en $1/r$ à grande distance.

2. La densité à l'origine est finie.

3. Il existe des oscillations de densité électronique à grande distance, le changement de densité totale ayant un comportement oscillant avec le vecteur d'onde $2k_F$ et décroissant en r^{-3}.

On peut se demander dans quelle mesure l'interaction coulombienne entre électrons modifie ces résultats, en particulier si elle n'a pas pour effet d'écranter les oscillations à grande distance. C'est ce que nous étudierons dans la section C, mais nous allons auparavant étendre ces résultats au cas d'électrons de Bloch.

B. **Généralisation au cas d'électrons de Bloch.** — Dans ce deuxième paragraphe, nous généralisons les résultats obtenus dans le premier paragraphe pour les électrons libres : nous nous plaçons donc dans l'approximation de Hartree, la structure périodique introduit quelques nouveaux concepts intéressants. Nous rappelons d'abord sommairement les résultats obtenus par Roth [8] dans la diffusion d'électrons de Bloch par un potentiel. Nous discutons ensuite l'existence et la forme des oscillations de densité électronique à grande distance et montrons qu'elles ne dépendent que de « l'amplitude de diffusion vers l'arrière » au niveau de Fermi (nous préciserons plus loin la signification de la « diffusion vers l'arrière »).

1. Diffusion des électrons de Bloch par un potentiel $V(r)$. — Les fonctions d'onde électroniques dans un potentiel périodique ont la forme :

$$\varphi_{nk}(r) = e^{ik.r}\, u_n(r, k)$$

où $u_n(r, k)$ est une fonction périodique. Leur énergie est $E_n(k)$. Si l'on introduit un potentiel perturbateur $V(r)$, on peut montrer que les fonctions d'ondes diffusées correspondant à la diffusion vers l'avant prennent la forme :

$$\Psi^+_{nk}(r) = \varphi_{nk}(r) - \frac{1}{4\pi}\int G^+_0(r, r', E)\, V(r')\, \Psi^+_{nk}(r')\, d^3r'$$

où $G^+_0(r, r', E)$ est la fonction de Green (*) pour l'énergie E :

$$G^+_0(r, r', E) = -\frac{1}{2\pi^2}\sum_n \int d^3k\, \frac{\varphi_{nk}(r)\, \varphi^*_{nk}(r')}{E - E_n(k) + i\varepsilon}.$$

Alors, Roth [8] a montré que la forme asymptotique à grande distance de $\Psi^+_{nk}(r)$ est :

$$\varphi_{nk}(r) + \sum_{\substack{m\\ k_i}} \frac{f^+_{mn}(k, k_i)\, e^{i\Phi_i}}{|r\, \bar{\bar{\alpha}}_i^{-1}\, r\, \det \bar{\bar{\alpha}}_j|^{1/2}}\, \varphi_{mk_i}(r). \qquad (8)$$

(*) Nous laissons de côté le problème de l'analyticité des fonctions $E_n(k)$ et $\varphi_{nk}(\boldsymbol{r})$ et supposerons que les expressions $[E - E_n(k) + i\varepsilon]^{-1}$ etc... ont un sens. Ce problème délicat n'a pu, jusqu'à présent, être traité qu'à une dimension [9], [10].

$f^+_{mn}(k, k_i)$ est la généralisation de l'amplitude de diffusion :

$$f^+_{mn}(k, k_i) = -\frac{1}{2\pi}\int \varphi^*_{mk_i}(r')\, V(r')\, \Psi^+_{nk}(r')\, d^3r'. \qquad (9)$$

La sommation sur m et k_i est étendue à toutes les bandes (**) et points de l'espace réciproque où

$$E_m(k_i) = E$$

et

$$\nabla_k E_m(k_i) = \lambda r \qquad \lambda > 0.$$

$\bar{\bar{\alpha}}_i$ est le tenseur de l'inverse des masses effectives :

$$\bar{\bar{\alpha}}_i = \nabla_k \nabla_k E_n(k_i)$$

et Φ_i un facteur de phase valant

0 si $\bar{\bar{\alpha}}_i$ est défini positif,

π si $\bar{\bar{\alpha}}_i$ est défini négatif,

$\pi/2$ si $\bar{\bar{\alpha}}_i$ est non défini.

On peut avoir une idée physique assez simple de ce résultat : Considérons par exemple une structure de Bloch à deux dimensions à maille élémentaire rectangulaire où la surface $E(k) = E$ est comprise dans une seule bande. Dans la direction r indiquée sur la figure 1, l'onde sortante comprend deux termes correspondant aux deux points de la courbe $E = E(k)$ ayant un gradient parallèle et de même sens que r. L'onde diffusée dans la direction r a sa vitesse de groupe $\nabla_k E(k)$ parallèle à r.

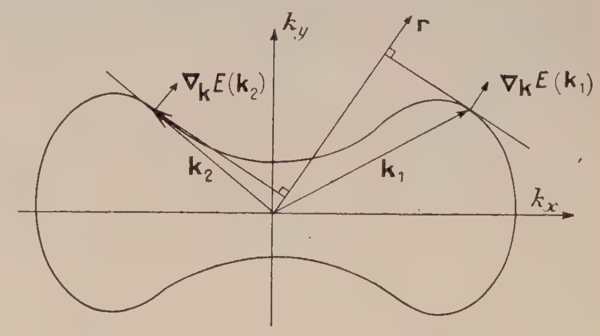


Fig. 1. — Diffusion dans la direction r dans une structure de Bloch.

Nous pouvons maintenant discuter les propriétés de l'écran électronique accumulé autour de la perturbation, en particulier la *charge totale* d'écran.

Dans ce cas, on ne peut pas diagonaliser simplement la matrice de déphasage η, comme il est possible de le faire pour des particules libres diffusées par un potentiel central. On peut faire un calcul direct de la charge produite par la perturbation, en considérant l'amplitude de diffusion $f^+(k, k')$ définie en (8) comme l'élément de matrice

(**) Par la suite, nous négligerons les indices m ou n, sachant que dans toutes les sommes sur k_i, nous avons à tenir compte de toutes les bandes.

de l'opérateur $e^{i\eta}$ sin η entre les états k et k'. En fait, la règle de somme de Friedel est une règle de trace et elle peut être généralisée à tout système (cf. Appendice A). La charge de l'écran pour les électrons d'énergie inférieure à E est égale à :

$$\frac{2}{\pi} \text{trace}_E \, \eta \tag{10}$$

où η est l'opérateur déphasage, diagonal en énergie, et la trace est prise sur les fonctions propres d'énergie E. La condition de self-consistance pour « écranter » une charge ponctuelle Z est que le potentiel $V(r)$ dans la structure périodique donne lieu à une matrice η telle que

$$Z = (2/\pi) \, \text{trace}_{E_F} \, \eta.$$

2. Calcul des variations de densité de charge a grande distance — La variation de densité électronique créée par la diffusion de l'électron de fonction d'onde de vecteur k est :

$$\Delta\rho_k(r) \simeq |\Psi_k^+|^2 - |\varphi_k|^2 = \sum_{k_i} \frac{a_i^*}{r} \varphi_{k_i}^*(r) \, \varphi_k(r) \, \overset{*}{f^+}(k, k_i) + cc$$

$$+ \sum_{k_i k_j} \frac{a_i^* a_j}{r^2} \varphi_{k_i}^*(r) \, \varphi_{k_j}(r) \, \overset{*}{f^+}(k, k_i) \, f^+(k, k_j)$$

où l'on a noté a_i/r l'expression $\dfrac{e^{i\varphi_i}}{|r.\bar{\bar{\alpha}}^{-1} r \det \bar{\bar{\alpha}}_i|^{1/2}}$ qui restera constante dans toute la suite puisque nous nous intéressons à une valeur déterminée de r, définissant ainsi des vecteurs k_i et φ_i et $\bar{\bar{\alpha}}_i$ ne dépendant que de E. La variation de densité par unité d'énergie, pour l'énergie E a pour valeur asymptotique (en tenant compte des deux directions de spin) :

$$\Delta\rho_E(r) \simeq \frac{2}{(2\pi)^3} \int \Delta\rho_k(r) \frac{dS_k}{|\nabla_k E(k)|}. \tag{11}$$

Dans cette intégrale, il y a deux genres de termes:

a) $A_i = \dfrac{a_i^*}{r} \varphi_{k_i}^*(r) \displaystyle\int \varphi_k(r) \, \overset{*}{f^+}(k, k_i) \frac{dS_k}{|\nabla_k E(k)|}$

qui peut s'écrire

$$\frac{a_i^*}{r} \varphi_k^*(r) \, u(r, -i\nabla) \, \overset{*}{f^+}(-i\nabla, k_i) \int \frac{e^{ik.r} \, dS_k}{|\nabla_k E(k)|}$$

où l'opérateur gradient opère toujours à droite et alors la fonction $u(r, -i\nabla)$ n'opère pas sur la partie spatiale incluse dans la fonction u. Le terme principal pour r grand de l'intégrale

$$\int e^{ik\cdot r} \frac{dS_k}{|\nabla_k E(k)|}$$

a été calculé par Roth [8]. L'argument de phase stationnaire mentionné ci-dessus montre que le terme principal de cette intégrale pour grand r correspond aux points k_j de la surface E = cte pour lesquels $\nabla_k E(k_j)$ est parallèle à r. Le calcul exact donne alors :

$$\int \frac{e^{ik\cdot r} dS_k}{|\nabla_k E(k)|} = \sum_{k_j} \left(\frac{2\pi a_j}{ir} e^{ik_j.r} + cc \right) \tag{12}$$

de telle sorte que :

$$A_i = \frac{2\pi}{ir^2} a_i^* \varphi_{k_i}^* [a_j \overset{*}{f^+}(k_j, k_i) \, \varphi_{k_j}(r) - a_j^* \overset{*}{f^+}(-k_j, k_i) \, \varphi_{-k_j}(r)].$$

b) Un autre genre de termes est :

$$\frac{a_i^* a_j}{r^2} \varphi_{k_i}^* \varphi_{k_j}(r) \int \overset{*}{f^+}(k, k_i) \, f^+(k, k_j) \frac{dS_k}{|\nabla_k E(k)|}.$$

L'intégrale est calculée dans l'appendice B et est égale à :

$$\frac{2\pi}{i} [f^+(k_i, k_j) - \overset{*}{f^+}(k_j, k_i)].$$

En groupant ces résultats, toute une série de termes s'annulent et on obtient pour $\Delta\rho_E(r)$ (en utilisant le fait que $\varphi_k(r) = \varphi_{-k}^*(r)$) :

$$\Delta\rho_E(r) \simeq \frac{1}{2\pi^2 ir^2} [\sum_{ij} a_i a_j \, \varphi_{k_i}(r) \, \varphi_{k_j}(r) \, f^+(-k_j, k_i) - cc].$$

On peut alors déduire la variation totale de densité en sommant jusqu'au niveau de Fermi E_F :

$$\Delta\rho(r) = \int^{E_F} \Delta\rho_E(r) \, dE.$$

Nous gardons dans cette intégrale le terme principal en intégrant par parties, et en remarquant que k_i, k_j sont fonctions de l'énergie E pour r donné. La primitive de $e^{i(k_i+k_j)\cdot r}$ est :

$$i \frac{e^{i(k_i+k_j)\cdot r}}{\left[\frac{1}{|\nabla_k E(k_i)|} + \frac{1}{|\nabla_k E(k_j)|}\right]}$$

et il vient pour le premier terme de $\Delta\rho$ décroissant en r^{-3} :

$$\Delta\rho(r) \simeq -\frac{1}{2\pi^2 r^3} \left\{ \sum_{i,j} a_i a_j \frac{\varphi_{k_i}(r) \, \varphi_{k_j}(r) \, f^+(-k_j, k_i)}{\frac{1}{|\nabla_k E(k_i)|} + \frac{1}{|\nabla_k E(k_j)|}} + cc \right\} \tag{14}$$

où maintenant les k_i sont pris au niveau de Fermi.

3. Conclusion. — La formule (14) donnant les oscillations de charge est assez compliquée, mais on peut remarquer :

a) La décroissance en r^{-3} à grande distance.

b) La seule présence des amplitudes de diffusion vers l'arrière $f^+(k_i, -k_j)$. Dans le cas général, on peut avoir plusieurs termes s'il existe plus d'un vecteur k_i. Par exemple, dans le cas de la figure 1, pour une onde incidente de vecteur k_1, il existe deux amplitudes de diffusion vers l'arrière $f^+(k_1, -k_1)$, $f^+(k_1, -k_2)$.

c) (14) est la somme de termes oscillants avec les vecteurs d'onde $k_i + k_j$, modulés par les fonctions périodiques $u_{k_i}(r) \, u_{k_j}(r)$ prises au niveau de Fermi.

Dans le cas d'une surface de Fermi convexe, (14) se simplifie :

$$\Delta\rho(r) = -\frac{1}{4\pi^2 r^3} \nabla_k E(k_0)| \left\{ a^2[\varphi_{k_0}(r)]^2 f^+(-k_0, k_0) + cc \right\}. \quad (15)$$

Nous voyons donc que les résultats obtenus avec les électrons libres se généralisent sans grand changement aux électrons de Bloch. Mais nous avons précisé en particulier la dépendance périodique de $\Delta\rho(r)$, superposée au facteur oscillant et décroissant en r^{-3}. Ce fait est important, car il peut modifier profondément l'analyse en harmoniques sphériques de la répartition $\Delta\rho(r)$ et les effets électrostatiques dans une cellule atomique différente de la cellule centrale [5], [6].

A titre d'exemple, nous allons appliquer les résultats (14) et (15) au cas d'une zone de Brillouin presque pleine et retrouver pour un gaz de trous des résultats analogues au cas des électrons. Soit un réseau cubique simple (cf. *fig.* 2) : on peut alors amener l'origine au point $A(K)$, coin de la zone de Brillouin, et poser $k_0 = K + k_F$ pour k_F petit :

$$E = E(k) - (k_F^2/2m^*)$$

$$\varphi_{k_0}(r) = \varphi_K(r)\, e^{ik_F \cdot r}.$$

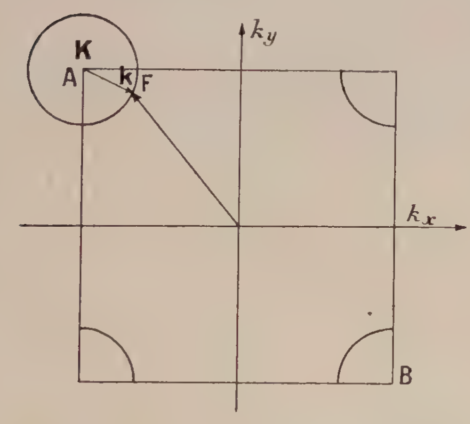


FIG. 2. — Variations de densité pour une sphère de trous.

On peut remarquer que

$$\varphi_K(r) = \varphi^*_{-K}(r) = \varphi^*_{-K+\tau}(r) = \varphi^*_K(r),$$

$\boldsymbol{\tau}$ étant le vecteur *AB* de la figure 2. Alors $\varphi_K(r)$ est réel et l'on a :

$$\Delta\rho(r) = -\frac{k_F\, m^*}{4\pi^2 r^3} [\varphi K(r)]^2 [f^+(-k_0, k_0)\, e^{2ik_F r} + cc]. \quad (16)$$

En comparant (16) avec l'expression (7) obtenue pour des électrons libres, il ne faut pas s'étonner de la présence de la msse effective m^*. Ceci vient de la différence de définition entre $f^+(k, k')$ et $f^+_{k_F}(\theta)$ pour des électrons libres. En fait :

$$m^* f^+(-k_F, k_F) = f^+_{k_F}(\pi).$$

On obtient alors exactement l'expression (7) pour les électrons libres, modulée par la fonction $[\varphi_K(r)]^2$:

$$\Delta\rho(r) = -\frac{k_F}{4\pi^2 r^3} [f^+_{k_F}(\pi)\, e^{2ik_F r} + cc]\, [\varphi K(r)]^2. \quad (17)$$

Il faut remarquer dans (17) que $\Delta\rho(r)$ est une densité d'électrons. On trouve donc pour une sphère d'électrons et de trous la même variation de densité de charge à grande distance. Ayant affaire à des trous, on s'attendrait à un *signe* opposé. En fait, ce signe est contenu dans la définition de l'amplitude de diffusion, où l'on a pris le potentiel $V(r)$ pour des électrons alors que si l'on traitait un gaz de trous de manière analogue à un gaz d'électrons, il faudrait considérer le potentiel $-V(r)$.

C. **Influence de l'interaction coulombienne sur les propriétés de l'écran.** — Dans les sections précédentes, nous avons décrit de manière phénoménologique l'influence de l'interaction coulombienne en introduisant un potentiel $V(r)$ à un électron soumis à certaines conditions : ne pas avoir de terme coulombien à grande distance, satisfaire la règle de Friedel, avoir un rayon d'action déterminé.

Nous voulons discuter plus en détail, dans cette section, la nature et les propriétés de l'écran et essayer de tenir compte de manière plus détaillée de l'interaction coulombienne. Mais le problème d'un gaz d'électrons en interaction est compliqué et ne peut être résolu que moyennant certaines simplifications. L'introduction d'une charge localisée $n(r)$ compliquant encore la situation, nous nous bornerons à étudier le cas de *petites* charges localisées, c'est-à-dire à ne considérer, dans les modifications apportées au gaz d'électrons, que les termes linéaires en $n(r)$ (nous nous limiterons au cas d'électrons libres).

Le premier paragraphe pose le problème et le relie aux propriétés de la constante diélectrique. Dans le second paragraphe, nous calculons la constante diélectrique et la répartition électronique dans l'écran dans divers approximations. Enfin le troisième paragraphe compare les résultats obtenus et discute en particulier la forme et l'amplitude des oscillations à grande distance.

1. RÉPONSE A UNE CHARGE LOCALISÉE. LA CONSTANTE DIÉLECTRIQUE. — Soit dans un gaz d'électrons une petite charge localisée extérieure $n(r)$. La présence de cette charge induit dans le système une répartition électronique $\Delta\rho(r)$. [Pour un système quantique $\Delta\rho(r)$ est la valeur moyenne dans l'état fondamental perturbé de l'opérateur $\sum_i \delta|r - r_i|$].

Le potentiel électrostatique $V(r)$ dans le système vérifie donc :

$$\Delta V(r) = 4\pi[n(r) - \Delta\rho(r)]. \qquad (18)$$

Comme nous nous intéressons aux effets linéaires, il est intéressant de prendre la transformée de Fourier de (18) :

$$- K^2 V(K) = 4\pi[n(K) - \Delta\rho K] \qquad (19)$$

et introduire, ainsi que le font Nozières et Pines [11] la constante diélectrique statique pour le vecteur d'onde K, $\varepsilon(K, 0)$:

$$- \varepsilon(K, 0) K^2 V(K) = 4\pi n(K). \qquad (20)$$

On tire alors de (19) et (20) :

$$\frac{1}{\varepsilon(K, 0)} - 1 = - \frac{\Delta\rho(K)}{n(K)}.$$

La charge induite est donc :

$$\Delta\rho(r) = - \frac{1}{(2\pi)^3}\int\left[\frac{1}{\varepsilon(K, 0)} - 1\right] n(K)\, e^{iK\cdot r}\, d^3K. \qquad (21)$$

En particulier, pour une charge extérieure $Z\delta(r)$:

$$\Delta\rho(r) = - \frac{Z}{(2\pi)^3}\int\left[\frac{1}{\varepsilon(K, 0)} - 1\right] e^{iK\cdot r}\, d^3K. \qquad (22)$$

L'étude des propriétés de l'écran revient donc à l'étude de la constante diélectrique du gaz perturbé. En particulier :

— la propriété d'écran, c'est-à-dire la non-existence de terme en r^{-1} dans le potentiel électrostatique global $V(r)$ du système, est liée au comportement de $\varepsilon(K, 0)$ pour K petit ;

— l'existence d'oscillations à grande distance est liée aux singularités de la constante diélectrique.

2. Calcul de la constante diélectrique statique et des propriétés de l'écran dans diverses approximations. — La première approximation utilisée a été l'approximation de *Thomas-Fermi linéarisée* [1], [12] : elle consiste à écrire que la densité électronique perturbée $\rho(E_F, r)$ est :

$$\rho(E_F, r) = \rho_0[E_F - V(r), r].$$

$\rho_0[E_F, r]$ étant la densité non perturbée,

$$\rho_0 = k_F^3/3\pi^2,$$

d'où en linéarisant :

$$\Delta\rho(r) = - (k_F/\pi^2)\, V(r),$$

d'où, avec (19), il vient :

$$V(K) = - \frac{4\pi}{K^2 + \lambda^2} n(K) \quad \text{avec } \lambda^2 = 4k_F/\pi$$

et

$$\varepsilon^{TF}(K, 0) = 1 + (4k_F/\pi K^2), \qquad (23)$$

et dans l'espace réel, pour l'écran d'une charge ponctuelle Z :

$$\begin{cases} V(r) = - (Z/r)\, e^{-\lambda r} \\ \Delta\rho^{TF}(r) = (\lambda^2 Z/4\pi r)\, e^{-\lambda r}. \end{cases} \qquad (24)$$

Sur les résultats (24), nous voyons que l'approximation de Thomas-Fermi donne un bon écran à grande distance (pas de terme coulombienne dans $V(r)$ à grande distance), mais d'une densité infinie à l'origine et pas d'oscillations à grande distance.

La méthode de Hartree self-consistante considère le mouvement d'électrons indépendants dans le potentiel $V(r)$. Alors la densité électronique perturbée $\Delta\rho(r)$ peut être calculée en fonction de $V(r)$. En particulier, dans l'approximation linéaire, on peut calculer $\Delta\rho(K)$ dans l'approximation de Born (cf. Appendice C), et l'on trouve :

$$\Delta\rho(K) = - (k_F/2\pi^2)\, V(K)\, g(K),$$

où la fonction $g(K)$ est :

$$g(K) = 1 + \frac{k_F}{K}\left(1 - \frac{K^2}{4k_F^2}\right) \mathrm{Log}\left|\frac{K + 2k_F}{K - 2k_F}\right| ; \qquad (25)$$

en utilisant (1), il vient pour la solution self-consistante de $V(K)$:

$$V(K) = - \frac{4\pi}{K^2 + (2k_F/\pi)\, g(K)} n(K),$$

d'où la constante diélectrique :

$$\varepsilon^{SFH}(K, 0) = 1 + (2k_F/\pi K^2)\, g(K) \qquad (26)$$

et la densité électronique d'écran pour une charge ponctuelle Z :

$$\Delta\rho^{SFH}(r) = \frac{Z}{(2\pi)^3}\int \frac{g(K)}{\pi K^2/2k_F + g(K)} e^{iK\cdot r}\, d^3K. \qquad (27)$$

Les résultats (26) et (27) appellent quelques remarques : *a*) On obtient à partir de (26) la constante diélectrique de Thomas-Fermi, en remplaçant $g(K)$ par sa valeur pour $K = 0$, $g(0) = 2$. L'approximation de Thomas-Fermi, bonne pour les faibles valeurs de K, ne peut donc pas bien décrire les propriétés d'écran pour les plus grandes valeurs de K. *b*) Le résultat (27) avait été obtenu directement [13] dans l'approximation de la phase aléatoire, valable à haute densité. Il semble donc que l'approximation self-consistante soit identique à l'approximation de la phase aléatoire. On peut montrer, en effet, que ce résultat est valable non seulement pour les phénomènes statiques, mais aussi pour ceux dépendant du temps. Ce point est discuté plus en détail dans l'appendice D. *c*) L'existence d'un point critique logarithmique pour $K = 2k_F$ dans la fonction $g(K)$:

$$g(K) \simeq 1 + (K - 2k_F/2k_F)\, \mathrm{Log}\,|K - 2k_F| \text{ pour } K \simeq 2k_F$$

donne lieu, pour $\Delta\rho(r)$, à des oscillations de densité électronique en $\cos 2k_F r/r^3$.

On peut essayer de trouver une approximation plus générale que l'approximation de Hartree self-consistante (c'est-à-dire de la phase aléatoire) valable à forte densité. Hubbard [14] par exemple a proposé de rendre compte des termes négligés en remplaçant la fonction $g(K)$ par

$$\frac{g(K)}{1-(2k_F/\pi K^2)\, f(K)\, g(K)} \quad \text{où } f(K)=\frac{1}{2}\frac{K^2}{K^2+k_F^2}.$$

Cette expression rend bien compte de l'écran pour K petit. Pour les grandes valeurs de K, le facteur $f(K)$ vaut $1/2$ et représente l'influence des termes d'échange. L'interpolation entre ces deux extrêmes est empirique. On obtient alors pour la densité électronique de l'écran d'une charge Z :

$$\Delta\rho^{H}(r)=\frac{2}{(2\pi)^3}\int\frac{g(K)}{(\pi K^2/2k_F)+g(K)\,[1-f(K)]}\,e^{iK\cdot r}\,d^3K \tag{28}$$

(28) a essentiellement les mêmes propriétés que dans le cas de l'approximation de la phase aléatoire.

Il est difficile d'aller plus loin dans le calcul de la constante diélectrique, mais nous pouvons dégager les propriétés importantes.

a) le comportement à petites valeurs de K, qui décrit les propriétés d'écran et l'absence de terme en r^{-1} dans le potentiel d'une charge localisée ;

b) le comportement à grandes valeurs de K ($g(K)\,\alpha K^{-2}$) donnant une densité électronique finie à l'origine ;

c) l'existence d'un point critique logarithmique pour $K=2k_F$ donnant naissance à des oscillations de densité électronique à grande distance. Ce fait est essentiel pour les problèmes qui nous intéressent. Il est lié à l'existence d'une surface de Fermi et au caractère métallique des premiers états excités.

3. Comparaison des résultats obtenus. — Nous pouvons maintenant comparer les résultats obtenus. En tenant compte de l'interaction coulombienne, l'écran d'une charge ponctuelle Z a les mêmes propriétés que dans l'approximation de Hartree décrite dans la première section : charge totale d'écran égale à Z, densité électronique finie à l'origine, oscillations à grande distance en $\cos 2k_F r/r^3$. Un tel écran est représenté sur la figure 3 comparé avec le résultat de la méthode de Thomas-Fermi linéarisée. Ces propriétés ne sont que le reflet dans l'espace réel, du comportement de la constante diélectrique $\varepsilon(K, 0)$. La figure 4 montre la variation de $\varepsilon(K, 0)$ avec K dans l'approximation de Hartree self-consistante, et dans l'approximation de Thomas-Fermi.

Le point essentiel de cette étude est la mise en évidence des oscillations de densité électronique. Pour les calculs pratiques, il est intéressant de comparer les amplitudes du terme principal à grande distance. En l'écrivant sous la forme :

$$\Delta\rho(r)=-\frac{Z}{2\pi^2}\,\alpha\,\frac{\cos 2k_F r}{r^3},$$

on obtient le tableau I des amplitudes relatives α pour diverses valeurs du vecteur d'onde de Fermi,

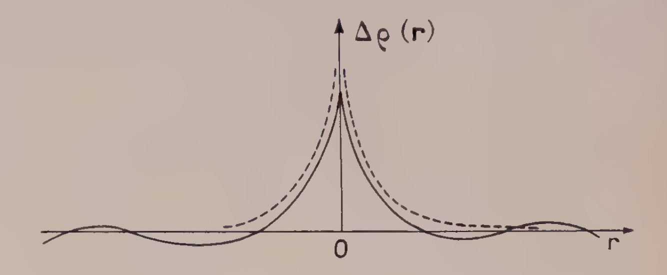


Fig. 3. — Variations de densité électronique autour d'une charge fixe.
———— Méthode de Hartree.
— — — — — Méthode de Thomas-Fermi.

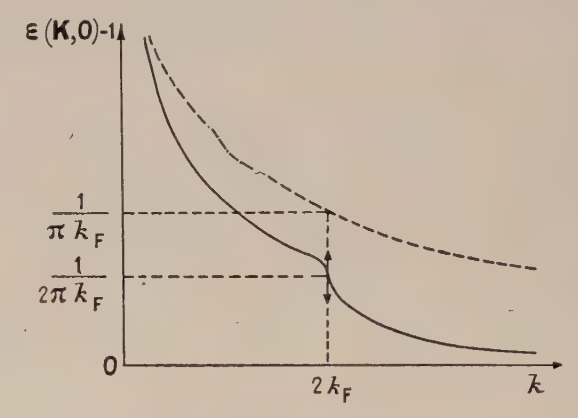


Fig. 4. — Constante édiélectrique $\varepsilon(K, 0)$.
———— Approximation de Hartree self-consistante.
— — — — Approximation de Thomas-Fermi.

dans les approximations étudiées (les densités métalliques usuelles correspondent à k_F compris entre 0,5 et 1 u. a). Dans ce tableau, l'approximation a) correspond à la méthode de Hartree avec un potentiel du type de Thomas-Fermi $-Z\,e^{-\lambda r}/r$ (qui satisfait à la règle de Friedel) :

$$\alpha_a = 1/(2k_F + 2/\pi)$$

b) donne l'amplitude des oscillations dans la méthode de Hartree self-consistante (ou phase aléatoire) :

$$\alpha_b = 2\pi^2 k_F/(2\pi k_F+1)^2\,;$$

c) donne l'amplitude dans l'approximation de Hubbard :

$$\alpha_c = 2\pi^2 k_F/(2\pi k_F + 3/5)^2.$$

TABLEAU I

AMPLITUDES RELATIVES DES OSCILLIATIONS A GRANDE DISTANCE

a) approximation de Hartree avec un potentiel-$Ze^{\lambda r}/r$
b) approximation de Hartree self-consistante
c) approximation de Hubbard.

K_F en u. a.	0,4	0,6	0,8	1
a	0,70	0,55	0,45	0,38
b	0,63	0,53	0,43	0,38
	0,81	0,62	0,50	0,42

Les valeurs calculées concordent à 15 % près. L'approximation de Hartree (approximation à un électron, avec un potentiel satisfaisant la règle de Friedel) rend donc bien compte de l'existence et de l'amplitude des oscillations de densité électronique ; elle représente une description satisfaisante des propriétés de l'écran formé autour d'une petite charge localisée dans un gaz d'électrons libres.

Nous terminerons ce paragraphe par quelques remarques :

a) Pour les grandes valeurs de r, on peut développer la *vraie* valeur de $\Delta\rho(r)$: le terme principal a la forme cos $2k_F\, r/r^3$. Dans l'approximation de Hartree avec un potentiel régulier, le terme suivant est en sin $2k_F\, r/r^4$, alors que les descriptions plus correctes de l'effet d'écran (phase aléatoire ou Hubbard) donnent un terme en

$$\text{Log}\, 2k_F\, r\, (\sin 2k_F r/r^4).$$

L'interprétation de ce terme n'est pas claire, mais il doit exister. Dans un calcul d'électrons indépendants, le seul terme ayant une signification physique claire est donc le terme en cos $2k_F\, r/r^3$.

b) On peut se demander quelle est la validité des résultats obtenus dans la section A. — Quand la charge centrale n'est pas petite. Il s'introduit alors une phase φ_F et les oscillations ont la forme cos $(2k_F\, r + \varphi_F)/r^3$. Il est pratiquement impossible d'aborder le calcul réel des oscillations et de donner un sens à la phase φ_F dans une approximation autre que celle de Hartree. Mais la discussion précédente justifie au moins l'ordre de grandeur de l'amplitude des oscillations. Les résultats d'un calcul numérique sont donc certainement valables s'ils ne dépendent pas crucialement de la phase.

c) Les résultats obtenus dans cette section pourraient être étendus au cas des électrons de Bloch. On obtiendrait des conclusions analogues, après des calculs rendus plus complexes par la présence du potentiel périodique. Pour avoir une idée sur les modifications apportées à l'amplitude des oscillations, nous pouvons comparer les résultats du tableau I à la valeur de l'amplitude relative α calculée pour un puits carré de rayon atomique r_s (cette approximation a été utilisée et justifiée dans le cas de métaux réels [15, [4] ; elle revient à écrire d'onde d'un électron sous la forme $\psi(r) = \varphi(r)\, u(r)$, $u(r)$ est une fonction périodique sauf dans la cellule de l'impureté, $\varphi(r)$ peut alors être écrite comme la fonction d'onde d'une particule libre diffusée par un puits carré de potentiel. L'amplitude relative α est alors, pour un métal monovalent par exemple :

$$\alpha = \frac{1}{12}\,(\sin k_F\, r_s - 2k_F\, r_s \cos 2k_F\, r_s) \simeq 0{,}185.$$

Cette valeur est de l'ordre de 2 à 3 fois plus faible que celles du tableau I, ce qui donne un ordre de grandeur du changement de l'amplitude relative des oscillations en présence d'un potentiel périodique.

D. **Conclusion.** — Nous avons donc montré l'existence d'oscillations de densité électronique autour d'une impureté. Pour un gaz d'électrons libres, ces oscillations sont du type cos $(2k_F r + \varphi)/r^3$. La généralisation au cas des électrons de Bloch met en évidence l'importance du potentiel périodique (dans les effets quadrupolaires par exemple [5], [6]). Cette étude nous a permis de préciser l'origine des oscillations, liée à l'existence d'une singularité du type $(K - 2k_F)\, \text{Log}\, |K - 2k_F|$ dans la constante diélectrique. Ces propriétés sont caractéristiques d'une substance métallique, c'est-à-dire de l'existence d'une surface de Fermi.

L'ensemble de ces résultats justifie l'interprétation donnée au couplage indirect par échange [2], au déplacement de Knight dans les alliages [3], [4] et aux effets quadrupolaires dans les alliages [5], [6]. Ils sont à rapprocher de la remarque suivante de Kohn [16] : la constante diélectrique statique d'un gaz d'électrons présente une singularité pour $K = 2k_F$ (dérivée infinie). Si l'on considère que les phonons sont créés par le déplacement de charges (ions), la courbe de dispersion des phonons doit présenter une singularité (rapide changement de fréquence) près de $K = 2k_F$. En effet, on peut écrire grossièrement que la fréquence des phonons $\omega(K)$ est :

$$\omega^2(K) = \Omega^2/\varepsilon(K, \omega),$$

Ω étant la fréquence de plasma des ions. ω est petit et présente donc une singularité pour $K \simeq 2k_F$ L'argument, généralisé à une surface de Fermi non sphérique, permet de définir une image de la surface de Fermi dans la surface de dispersion des phonons.

Appendice A.

Généralisation de la règle de somme de Friedel.

Soit H_0 l'hamiltonien décrivant le mouvement d'électrons indépendants, V une perturbation localisée. $H = H_0 + V$.

On définit les opérateurs fonctions de Green non perturbées et perturbées (*) :

$$G_0^{\pm}(E) = \frac{1}{E - H_0 \pm i\varepsilon} \text{ et } G^{\pm} = \frac{1}{E - H \pm i\varepsilon}$$
$$\varepsilon \text{ petit} > 0.$$

Soient $R^{\pm}(E)$ et $K(E)$ les opérateurs décrivant la diffusion pour une onde sortante $[R^+(E)]$, rentrante $[R^-(E)]$ ou stationnaire $[K(E)]$:

$$R^{\pm}(E) = V + V G_0^{\pm}(E) R^{\pm}(E) \quad \text{(A.1}$$

$$K(E) = V + V \mathcal{P} \frac{1}{E - H_0} K(E)$$

($\mathcal{P}$ signifiant partie principale)

$n_0(E)$ et $n(E)$ sont les nombres d'états d'énergie inférieure à E pour les systèmes non perturbé et perturbé :

$$n_0(E) = \int^E \mathrm{d}E' \text{ trace } \delta(E' - H_0)$$

et $$n(E) = \int^E \mathrm{d}E' \text{ trace } \delta(E' - H) \quad \text{(A.2)}$$

$$\delta(E' - H) = \frac{i}{2\pi} [G^+(E') - G^-(E')]$$

or

$$G^{\pm}(E') = G_0^{\pm}(E') + G_0^{\pm}(E') R^{\pm}(E') G_0^{\pm}(E),$$

d'où :

$$n(E) - n_0(E) = \frac{i}{2\pi} \int^E \mathrm{d}E'$$
$$\text{trace } [G_0^+(E') R^+(E') G_0^+(E') - G_0^-(E') R^-(E') G_0^-(E')].$$

Comme on considère une trace, on peut permuter cycliquement les opérateurs :

$$G_0^{\pm 2}(E') R^{\pm}(E') = G_0^{\pm}(E') \{ 1 + \ldots + [G_0^{\pm}(E') V]^p + \ldots \}$$

Mais on a :

$$\text{Trace } \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}E} [G_0^{\pm}(E) V]^p = - p \text{ trace } G_0^{\pm}(E) [G_0^{\pm}(E) V]^p,$$

d'où par intégration :

$$n(E) - n_0(E) = \frac{i}{2\pi} \text{trace} \left\{ - \sum_p \frac{1}{p} G_0^+(E) [G_0^+(E) V]^p + cc \right\}$$
$$= \frac{i}{2\pi} \text{trace} \left\{ \log [1 - G_0^+(E) V] - \log [1 - G_0^-(E) V] \right\} \quad \text{(A.3)}$$

mais on peut écrire :

$$\text{Trace } [\log (A + iB) - \log (A - iB)] = 2i \text{ trace tg}^{-1} (BA^{-1})$$

et

$$1 - G_0^{\pm}(E) V = 1 - \mathcal{P} \frac{1}{E - H_0} V \pm i\pi\delta(E - H_0) V$$
$$= K(E) V^{-1} \mp i\pi\delta(E - H_0) V$$

(*) Nous employons ici le langage de la théorie formelle de la diffusion. Voir par exemple Messiah [17].

d'où l'on tire de (A.3) :

$$n(E) - n_0(E) = - \frac{1}{\pi} \text{trace tg}^{-1} [\pi\delta(E - H_0) K(E)]. \quad \text{(A.4)}$$

On peut introduire dans ce formalisme l'opérateur déphasage η, diagonal en énergie dont les éléments de matrice entre les états $|E_1 \alpha_1 >$ et $|E_2 \alpha_2 >$ (α représente l'ensemble des indices autres que l'énergie, définissant l'ensemble complet de vecteurs $|E\alpha >$) :

$$< E_1 \alpha_1 | \text{tg } \eta | E_2 \alpha_2 >$$
$$= - \pi < E_1 \alpha_1 | K(E_2) | E_2 \alpha_2 > \delta(E_1 - E_2). \quad \text{(A.5)}$$

Alors (A.4) devient :

$$n(E) - n_0(E) = (1/\pi) \sum_\alpha < E\alpha | \eta | E\alpha >$$

que l'on peut noter $\text{trace}_E\ \eta$ c'est-à-dire trace sur l'ensemble des vecteurs d'énergie E.

$$n(E) - n_0(E) = (1/\pi) \text{ trace}_E\ \eta. \quad \text{(A.6)}$$

S'il y a des états liés d'énergie inférieure à E dans le système non perturbé ou perturbé au nombre de σ_0 et σ, il suffit, dans les expressions (A.2), de restreindre les intégrales au continuum, on trouve alors :

$$n(E) - n_0(E) = \sigma - \sigma_0 + (1/\pi) \text{ trace}_E\ \eta. \quad \text{(A.7)}$$

On en déduit la généralisation de la règle de Friedel [13]. La charge d'écran $Z(E)$ localisée par les électrons d'énergie inférieure à E est (en tenant compte des deux directions de spin) :

$$Z(E) = 2(\sigma - \sigma_0) + (2/\pi) \text{ trace}_E\ \eta. \quad \text{(A.8)}$$

En particulier, si V représente un potentiel self-consistant décrivant l'écran d'une charge totale Z, on doit avoir :

$$Z(E_F) = Z.$$

Densité d'états et déplacement des niveaux. — Pour un ensemble de centres perturbateurs localisés, on a [18] :

$$R^{\pm}(E) = \sum_i R_i^{\pm}(E)$$
$$+ \sum_{n=2}^{\infty} \sum_{\substack{i_1 \neq i_2 \\ i_2 \neq i_3 \\ i_{n-1} \neq i_n}} R_{i_1}^{\pm}(E)\, G_0^{\pm} R_{i_2}^{\pm}(E) \ldots R_{i_n}^{\pm}(E)$$

Pour une faible concentration x par unité de volume de centres perturbateurs, le changement de densité d'état $\Delta\rho(E)$ est :

$$\Delta\rho(E) = \rho(E) - \rho_0(E) = \frac{x}{\pi} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}E} \text{trace}_E\ \eta. \quad \text{(A.9)}$$

Soit $S(E)$ le déplacement d'un niveau de E_0 dans l'état non perturbé à E dans l'état perturbé :

$$E = E_0 + S(E) \text{ et } \rho(E)\, \mathrm{d}E = \rho_0(E_0)\, \mathrm{d}E_0,$$

d'où :

$$\rho(E) = \frac{\rho_0[E - S(E)]}{1 + \frac{\partial S}{\partial E}(E)} \simeq \rho_0(E) - \frac{d}{dE}[S(E)\,\rho_0(E)].$$

(Ceci est valable pour petit x et en dehors des valeurs de E pour lesquelles $d\rho_0/dE$ est infini), d'où :

$$S(E)\,\rho_0(E) = -(x/\pi)\,\text{trace}_E\,\eta. \qquad \text{(A.10)}$$

Approximation des bandes rigides. — Dans l'approximation de Born, (A.4) devient :

$$n(E) - n_0(E) = -\,\text{trace}\,\delta(E - H_0)\,V,$$

d'où le déplacement d'énergie :

$$S(E)\,\rho_0(E) = x\,\text{trace}\,\delta(E - H_0)\,V.$$

En particulier, pour des électrons *libres*, les éléments de matrice diagonaux de V ne dépendent pas de E et l'on a :

$$S(E) = x\int V(\mathbf{r})\,d^3\mathbf{r}, \qquad \text{(A.11)}$$

ce qui est exactement l'approximation des bandes rigides.

Appendice B.

Le théorème optique pour des électrons de Bloch.

L'amplitude de diffusion est définie par :

$$f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i) = -\frac{1}{2\pi}\int \varphi^*_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}')\,V(\mathbf{r}')\,\Psi^+_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}')\,d^3\mathbf{r}'. \qquad \text{(B.1)}$$

$\Psi^+_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ est la fonction d'onde décrivant la diffusion vers l'avant d'un électron de Bloch de fonction d'onde $\varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$.

Calculons :

$$B(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j) = \int f^{+*}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i)\,f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}_j)\,\frac{dS_{\mathbf{k}}}{|\nabla_{\mathbf{k}}\,E(\mathbf{k})|}$$
$$= \frac{1}{4\pi^2}\iint d^3\mathbf{r}\,d^3\mathbf{r}'\,V(\mathbf{r})\,V(\mathbf{r}')\,\varphi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r})\,\varphi^*_{\mathbf{k}_j}(\mathbf{r}')$$
$$\int \Psi^+_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}')\,\Psi_{-\mathbf{k}}(\mathbf{r})\,\frac{dS_{\mathbf{k}}}{|\nabla_{\mathbf{k}}\,E(\mathbf{k})|}$$

(en utilisant le fait que $\Psi^+_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \Psi^{*}_{-\mathbf{k}}(\mathbf{r})$).

Effectuant l'intégration sur la surface d'énergie constante $E = E(\mathbf{k})$, il vient :

$$\int \Psi^+_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}')\,\Psi^-_{-\mathbf{k}}(\mathbf{r})\,\frac{dS_{\mathbf{k}}}{|\nabla_{\mathbf{k}}\,E(\mathbf{k})|} = -\,i\pi[G^+(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) - G^-(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E)]$$

où $G^+(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E)$ sont les fonctions de Green décrivant la diffusion vers l'avant ou vers l'arrière du système perturbé. Mais :

$$\varphi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}) = \Psi^+_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}) + \frac{1}{4\pi}\int V(\mathbf{r}')\,G^+(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E)\,\varphi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}')\,d^3\mathbf{r}',$$

d'où il vient :

$$B(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j) = -\,i\int d^3\mathbf{r}\,V(\mathbf{r})$$
$$\{[\varphi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}) - \Psi^+_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r})]\,\varphi^+_{\mathbf{k}_j}(\mathbf{r}) - \varphi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r})\,[\varphi^*_{\mathbf{k}_j}(\mathbf{r}) - \Psi^-_{-\mathbf{k}_j}(\mathbf{r})]\}$$
$$= \frac{2\pi}{i}[f^+(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j) - f^{*+}(\mathbf{k}_j, \mathbf{k}_i)]. \qquad \text{(B.2)}$$

En particulier, on tire de (B.2) la relation :

$$\int |f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2\,\frac{dS_{\mathbf{k}}}{|\nabla_{\mathbf{k}}\,E(\mathbf{k})|} = \frac{4\pi}{i}\,Im f^+(\mathbf{k}', \mathbf{k}'). \qquad \text{(B.3)}$$

Un calcul tout à fait analogue, en utilisant les fonctions de Green non perturbées, donne de même :

$$C(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j) = \int f^{+*}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j)\,f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k})\,\frac{dS_{\mathbf{k}}}{|\nabla_{\mathbf{k}}\,E(\mathbf{k})|}$$
$$= \frac{2\pi}{i}[f^+(\mathbf{k}_j, \mathbf{k}_i) - f^{+*}(\mathbf{k}^s, \mathbf{k}_j)] = B^*(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_j). \qquad \text{(B.4)}$$

En particulier :

$$\int |f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2\,\frac{dS_{\mathbf{k}'}}{|\nabla_{\mathbf{k}'}E(\mathbf{k}')|} = \frac{4\pi}{i}\,Im f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}). \qquad \text{(B.5)}$$

Les relations (B.2) et (B.4) d'une part, et (B.3) et (B.5) d'autre part, sont en fait les mêmes relations et se déduisent facilement les unes des autres en remarquant que l'amplitude de diffusion vérifie la relation aisément démontrable (*) :

$$f^+(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = f^+(-\mathbf{k}', -\mathbf{k}).$$

Ces relations ne sont qu'une généralisation du théorème optique de la diffusion des particules libres, reliant la section efficace totale à l'amplitude de duffusion vers l'avant [7] :

$$\sigma = \int |f^+(\theta)|^2\,d\Omega = \frac{4\pi}{ik}\,Im f^+_k(0)$$

Appendice C.

Calcul des variations de densité électronique dans l'approximation de Hartree pour de faibles perturbations

Soit un gaz d'électrons au niveau de Fermi $E_F = k_F^2/2$ soumis à un potentiel $V(\mathbf{r})$ petit. Dans l'approximation de Born, la fonction d'onde décrivant la diffusion d'un électron de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ est :

$$\Psi^+_k(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - 2\int G^+_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\,V(\mathbf{r}')\,e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'}\,d^3\mathbf{r}'$$

(*) En remarquant que :
$$\langle \mathbf{k}|V|\mathbf{k}'\rangle = \langle -\mathbf{k}'|V|-\mathbf{k}\rangle.$$

où

$$G_k^+(r, r') = \frac{1}{(2\pi)^4} \int \frac{e^{ik.(r-r')}}{k^2 - k'^2 + i\eta} d^3k \qquad (\eta \text{ petit} > 0)$$

est la fonction de Green pour une particule libre. On en tire la variation totale de densité de charge (en tenant compte des deux directions de spin) :

$$\Delta\rho(r) = \frac{2}{(2\pi)^3} \int_{k<k_F} d^3 k [|\Psi_K^+(r)|^2 - 1]$$

d'où

$$\Delta\rho(r) = -\frac{2}{(2\pi)^3} \int_{k<k_F} d^3 k$$

$$\iint d^3 k' \, d^3 r' \, V(r') \frac{e^{i(k'-k).(r-r')}}{k^2 - k'^2 + i\eta} + cc$$

$$= -\frac{4}{(2\pi)^3} \int V(K) \, e^{iK.r} \, d^3 K$$

$$\left\{ \int_{k<k_F} \frac{d^3 k}{k^2 - (k+K)^2 + i\eta} + \int \frac{d^3 k}{k^2 - (k-K)^2 - i\eta} \right\}$$

$K = k' - k$ et $V(K)$ est la transformée de Fourier de $V(r)$. L'intégrale sur k est aisément évaluée et donne :

$$\pi k_F \left[1 + \frac{k_F}{K} \left(1 - \frac{K^2}{4k_F^2} \right) \text{Log} \left| \frac{K + 2k_F}{K - 2k_F} \right| \right]$$

que nous noterons $\pi k_F \, g(K)$. On en tire :

$$\Delta\rho(r) = -\frac{k_F}{2\pi^2} \int V(K) \, g(K) \, e^{iK \cdot r} \, d^3 K.$$

Appendice D.

Approximations de Hartree self-consistante et de la phase aléatoire.

Introduisons dans un gaz d'électrons une petite charge extérieure $n(r, t)$. Cette charge induit une variation de densité électronique $\Delta\rho(r, t)$. Le potentiel électrostatique est donc :

$$V(r, t) = \int \frac{\Delta\rho(r', t) - n(r', t)}{|r - r'|} d^{43} r'. \qquad \text{(D.1)}$$

Dans la méthode self-consistante de Hartree, $\Delta\rho(r, t)$ est calculé en supposant les électrons indépendants soumis au potentiel $V(r, t)$. Dans l'approximation linéaire,

$$\Delta\rho(r, t) = -\frac{k_F}{2\pi^2} \int e^{-i(\omega t + K.r)} V(K, \omega) \, f(K, \omega) \, d^3 K \, d\omega,$$

$V(K, \omega)$ est la transformée de Fourier spatiale et temporelle de $V(r, t)$ et $f(K, \omega)$ une fonction calculée par Hubbard [14] :

$$f(K, \omega) = g\left(\frac{K}{k_F}, \frac{2\omega}{k_F^2}\right) + ih\left(\frac{K}{k_F}, \frac{2\omega}{k_F^2}\right)$$

avec

$$g(x, y) = 1 + \frac{1}{2x}\left[1 - \frac{1}{4}\left(\frac{y}{x} - x\right)^2\right] \text{Log} \left|\frac{y - x(x+2)}{y - x(x-2)}\right|$$

$$+ \frac{1}{2x}\left[1 - \frac{1}{4}\left(\frac{y}{x} + x\right)^2\right] \text{Log} \left|\frac{y + x(x+2)}{y + x(x-2)}\right|$$

et

$$h(x, y) = 0 \quad \text{si } x > x(x+2)$$
$$\text{ou si } x > 2 \text{ et } y < x(x-2)$$

$$= -\frac{\pi}{2x}\left[1 - \frac{1}{4}\left(\frac{y}{x} - x\right)^2\right] \text{si } x > 2$$
$$\text{et } x(x-2) < y < x(x+2)$$
$$\text{ou, si } x < 2 \text{ et } x(2-x) < y < x(x+2)$$

$$= -\frac{\pi}{2}\frac{y}{x} \qquad \text{si } x < 2 \text{ et } 0 < y < x(2-x)$$

$h(x, -y) = h(x, y)$.

En prenant la transformée de Fourier de (D.1), il vient alors :

$$V(K, \omega) = \frac{-4\pi}{K^2 + \frac{2k}{\pi} f(K, \omega)} n(K, \omega)$$

et la constante diélectrique pour la fréquence ω et le vecteur d'onde K :

$$\varepsilon(K, \omega) = 1 + \frac{2k_F}{\pi K^2} g(K, \omega). \qquad \text{(FD.2)}$$

(D.2) est *exactement* le résultat obtenu dans l'approximation de la phase aléatoire [11]. La similitude des deux approximations a été discutée par Ehrenreich et Cohen [19]. De la connaissance de la constante diélectrique, on peut en effet obtenir (cf. Nozières et Pines [11]) : l'énergie de l'état fondamental du système d'électrons non perturbé ; les propriétés des plasmas ; la fonction de corrélation dans le gaz d'électrons ; l'énergie des premiers états excités.

En particulier, l'existence d'ondes de densité électronique dans l'approximation de Hartree, qui a été beaucoup discutée dernièrement [20], [21], est liée aux zéros de la constante diélectrique statique $\varepsilon(K, 0)$. De l'expression ci-dessus pour $\varepsilon(K, 0)$, il ressort qu'il n'y a pas de zéros et qu'il ne peut donc pas exister de petites ondes de densité électronique.

Manuscrit reçu le 22 mars 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Friedel (J.), *Adv. in Physics*, 1954, **3**, 446.
[2] Ruderman (M. A.) et Kittel (C.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 99.
[3] Blandin (A.) et Daniel (E.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1959, **10**, 126.
[4] Daniel (E.), *Thèse*, Paris, 1959.
[5] Kohn (W.) et Vosko (S. H.), *Phys. Rev.*, 1960, **119**, 912.
[6] Blandin (A.) et Friedel (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 689.
[7] Schiff (L. I.), Quantum Mechanics, McGraw-Hill, New York, 1955.
[8] Roth (L. M.), *Thèse*, Harvard University, 1957.
[9] Kohn (W.), *Phys. Rev.*, 1959, **115**, 809.
[10] Leman (G.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1960, **13**, 221.
[11] Nozières (P.) et Pines (D.), *Nuovo Cimento*, 1958, **9**, 470.
[12] Mott (N. F.) et Jones (H.), Metals and alloys, Oxford, 1936.
[13] Langer (J. S.) et Vosko (S. H.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1960, **12**, 196.
[14] Hubbard (J.), *Proc. Roy. Soc.*, 1957, A **243**, 336.
[15] Blatt (F. J.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 285.
[16] Kohn (W.), *Phys. Rev.*, Letters, 1959, **2**, 393.
[17] Messiah (A.), Mécanique quantique, tome II (Dunod, Paris, 1959).
[18] Watson (R. M.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 575.
[19] Ehrenrich (H.) et Cohen (M. H.), *Phys. Rev.*, 1959, **115**, 786.
[20] Overhauser (A. W.), *Phys. Rev.*, Letters, 1960, **4**, 415.
[21] Kohn (W.) et Nettel (S. J.), *Phys. Rev.*, Letters, 1960, **5**, 8.

REVUE DES LIVRES

Problèmes actuels en théorie de la Relativité. (Réunions *Louis de Broglie* de 1958.) 1 vol. de 124 p., 16 × 24 cm, Paris, édition de la Revue d'Optique, 1960, prix 12 NF.

Recueil varié de conférences, expérimentales ou théoriques. Signalons deux très beaux exposés de M. Lichnerowicz, sur les ondes électromagnétiques et gravifiques et de Mme Tonnelat sur les diverses théories unitaires. Que les lecteurs seront heureux de les lire sans avoir à fournir le gros effort que nécessitent habituellement les écrits sur la Relativité générale ! — (Mesure du temps en Relativité, par O. Costa de Beauregard. Chronométrie hertzienne, par B. Decaux. Décalage vers le rouge des raies spectrales, par E. Schatzmann. Décalage vers le rouge et vieillissement de la lumière, par S. Mavridès. Astronomie de position et relativité générale, par J. Lévy. Induction électromagnétique en relativité générale, par Pham Man Quan. Conditions d'isothermie en relativité générale, par Pham Tan Hoang. Choix et interprétation des système de coordonnées en relativité générale, par S. Kichenassanuy. Électricité et relativité générale, par C. Langos. Quantification du mouvement interne des masses fluides relativistes, par P. Hillion et J. P. Vigier et les deux conférences déjà mentionnées, le tout intéressant et récent.)

J. Winter.

Daniel Blanc et Georges Ambrosino, **Éléments de Physique Nucléaire.** (1 vol., 16 × 24 cm, 328 pages, Masson et Cie, éditeurs, Paris, 1960).

Comme le fait remarquer M. l'Inspecteur général Baïssas dans la préface, en France il n'y a pratiquement pas de traité de Physique nucléaire, mises à part les traductions des bons ouvrages étrangers. Nous devons donc remercier les auteurs d'avoir entrepris d'écrire un tel ouvrage et surtout d'y avoir pleinement réussi.

Il a été écrit pour les étudiants des Facultés des Sciences et aussi pour les ingénieurs qui désirent avoir une vue d'ensemble précise et utilisable sur la Physique nucléaire. Sa lecture demande de connaître déjà la Physique, il ne s'agit pas là d'un ouvrage de vulgarisation. Les développements théoriques sont limités à l'essentiel; les résultats sont toujours indiqués de façon à ce que le lecteur ait la possibilité d'effectuer des applications quantitatives. Des références bibliographiques nombreuses renvoient aux ouvrages dans lesquels on retrouve le détail des raisonnements qui conduisent aux résultats cités et qui auraient alourdi beaucoup le texte.

Les auteurs ont insisté sur l'aspect physique des phénomènes, qui est essentiel pour une parfaite compréhension des faits.

L'ouvrage comporte neuf chapitres : Évolution des recherches sur la structure de l'atome, Les réactions nucléaires et l'énergie atomique, Structure et stabilité de l'atome, Les noyaux, Les désintégrations radioactives, Les réactions nucléaires, Le neutron, Fission nucléaire, Réactions en chaîne, Structure et cohésion nucléaires, Les réactions thermonucléaires.

Dans un appendice on trouve les tableaux, courbes et données numériques utiles aux applications.

Dupuy.

Duquesne (M.), Grégoire (R.) et Lefort (M.), **Travaux pratiques de Physique Nucléaire et de Radiochimie.** (1 vol., 16 × 24 cm, 324 pages, Masson et Cie, Paris, 1960)

Dans cet ouvrage les auteurs présentent les travaux pratiques qu'ils font effectuer aux étudiants, à l'Institut du Radium, pour le Certificat de Physique nucléaire et Radioactivité. Il est évidemment très précieux pour ces étudiants, mais aussi pour tous ceux qui, dans l'industrie ou dans les laboratoires, ont à s'initier à ces techniques particulières.

Les bons livres de Physique nucléaire abondent, mais ils ne suffisent pas pour former un bon expérimentateur, c'est pourquoi Frédéric Joliot avait demandé aux auteurs de rédiger ce recueil qui concourt fort heureusement à la compréhension de cette branche de la Physique.

D'ailleurs, les rappels théoriques sont nombreux avant chaque manipulation ; dans la description du mode opératoire, les détails techniques sont nombreux et précis ; les auteurs ont insisté sur les ordres de grandeur des phénomènes mis en cause, sans la connaissance desquels la réalisation d'une bonne expérience et aléatoire.

Les travaux pratiques sont répartis en deux groupes ; le premier est relatif aux méthodes de détection et de mesure des rayonnements nucléaires, le second aux méthodes d'études de la structure nucléaire et des phénomènes chimiques associés à ces réactions. Dans un appendice le Dr Devoret, spécialiste en radioprotection, traite des effets pathogènes des rayonnements, des normes de protection, de la protection contre les divers rayonnements et des unités utilisées en ce domaine. Dans un autre appendice sont rassemblés les constantes physiques utiles et des énoncés de problèmes.

Dupuy.

LUMINESCENCE DES CRISTAUX D'AgCl PURS ET DOPÉS AUX BASSES TEMPÉRATURES

Par K. VACEK (*) et J. RINGEISSEN,
Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide, Institut de Physique, Université de Strasbourg.

Résumé. — La luminescence des cristaux de AgCl, AgCl + 0,01 mol % $CdCl_2$ et AgCl + 0,5 mol % TlCl a été étudiée aux températures de l'azote et de l'hélium liquides. La bande d'émission à environ 4 800 Å est décalée à 77 °K en fonction de l'ion dopé. L'émission dans la région spectrale rouge à la température de l'hélium liquide disparaît et la bande d'émission principale est décalée vers les grandes longueurs d'onde.

Abstract. — The luminescence of AgCl, AgCl + 0.01 mol % $CdCl_2$ and AgCl + 0.5 mol % TlCl crystals was measured at liquid nitrogen and helium temperatures. A displacement of the emission band at about 4 800 Å was observed at 77 °K in function of the doped ion. The emission in the red region of the luminescence spectrum disappears at 4 °K and the fundamental emission band is displaced towards lower energies when the temperature decreases.

Introduction. — La luminescence des cristaux d'AgCl purs a été mesurée par plusieurs auteurs [1], [2], [3], [4], essentiellement à la température de l'azote liquide. Les résultats des expériences ont montré que le spectre d'émission se compose de deux bandes, l'une à environ 4 700-4 800 Å et l'autre à environ 6 400 Å. La luminescence des cristaux d'AgCl avec 0,5 mol % TlCl a été mesurée par Berger [5]. A la température de — 180 °C, il a trouvé deux bandes d'émission à environ 4 700 et 6 100 Å. L'interprétation de la nature de la bande d'émission près de 4 800 Å a été donnée par Matyas [6]. Il a supposé que cette bande d'émission apparaît par la recombinaison des électrons de la bande de conduction avec les centres formés par un trou positif lié, soit à une lacune cationique (a), soit à une lacune cationique sur un cran de la dislocation (b). Dans ce travail, nous avons étudié les spectres de la luminescence des cristaux purs et dopés de AgCl aux températures de l'azote et de l'hélium liquides.

Conditions expérimentales. — Les cristaux utilisés ont été préparés par recristallisation lente de la substance fondue entre deux lamelles de verre, par la méthode décrite ailleurs [7]. Trois types de cristaux ont été étudiés : AgCl pur, AgCl + 0,01 mol % $CdCl_2$ et AgCl + 0,5 mol % TlCl. Les spectres d'émission ont été observés à l'aide d'un spectrographe « Huet AII ». Les plaques utilisées étaient des plaques « Super Panchro Lumière ». La densité optique des spectres obtenus a été mesurée avec un densitomètre enregistreur. La position du maximum des bandes était déterminée à moins de 5 Å près. Les échantillons étaient plongés directement dans l'azote ou l'hélium liquides. Les cryostats étaient ceux utilisés au Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide [8]. La source pour l'excitation des cristaux était une lampe à vapeur de mercure « Philora » qui ne laisse passer que la lumière ultraviolette à partir de 4 078 Å. Les conditions expérimentales pour les différents échantillons étaient les mêmes.

(*) Institut de Physique, Université Charles IV, Prague.

Résultats obtenus.

a) $T = 77$ °K.

Les courbes de la luminescence des cristaux étudiés à la température de l'azote liquide sont reproduites sur la figure 1. On voit que la position du

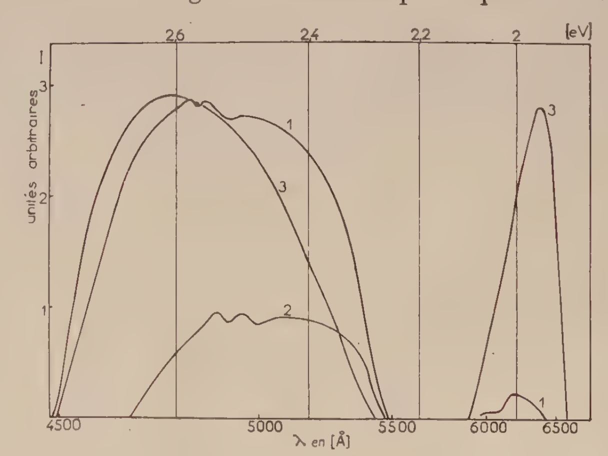


Fig. 1. — Le spectre de la luminescence (I) à la température de l'azote liquide. Courbe 1 : AgCl ; 2 : AgCl + 0,01 mol % $CdCl_2$; 3 : AgCl + 0,5 mol % TlCl.

maximum dépend de la nature de l'ion dopé. En même temps, dans le cas des cristaux de AgCl + $CdCl_2$, l'intensité de l'émission est beaucoup plus faible que dans le cas des cristaux purs. Les cristaux de AgCl + TlCl ont, dans la région

spectrale rouge, une forte bande d'émission qui pourrait correspondre [5] à la superposition de deux bandes, l'une correspondant à la présence des ions Tl^+ (6 388 Å) et l'autre à la présence des ions excédentaires Ag^+ (~ 6 200 Å).

b) $T = 4$ °K.

Aux très basses températures, la position des maxima des bandes principales de tous les cristaux reste la même, mais est décalée vers les grandes longueurs d'onde par rapport à leur position spectrale à la température de l'azote liquide (*fig.* 2).

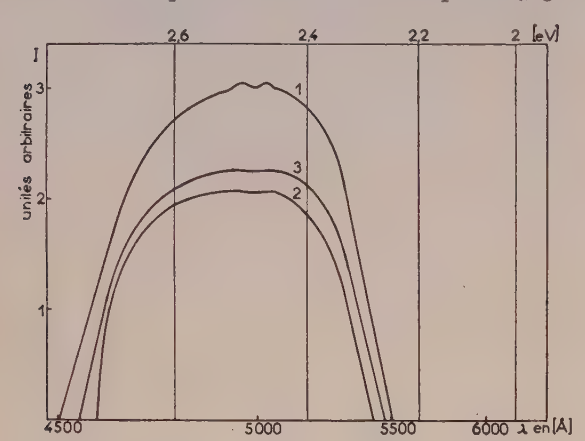


Fig. 2. — Le spectre de la luminescence (I) à la température de l'hélium liquide. Courbe 1 : AgCl ; 2 : AgCl + 0,01 mol. % $CdCl_2$; 3 : AgCl + 0,5 mol. % TlCl.

Pour le cristal pur de AgCl, ce décalage correspond à environ 0,08 eV. L'émission rouge des cristaux d'AgCl et AgCl + Tl^+ disparaît à cette température. Dans le tableau I, on a indiqué la position spectrale des bandes.

TABLEAU I

Cristal	Température (°K)	1re bande (Å)		2e bande (Å)
—	—	—		—
AgCl	77	4 809	4 850	6 200
AgCl + Cd^{++}	77	4 880	4 954	—
AgCl + Tl^+	77	4 750	—	6 388
AgCl	4	4 954	5 026	—
AgCl + Cd^{++}	4	4 954	5 026	—
AgCl + Tl^+	4	4 954	5 026	—

Discussion. — Les résultats obtenus montrent, d'une part que la bande principale d'émission est décalée vers les grandes longueurs d'onde quand la température s'abaisse à 4 °K, d'autre part que la forte bande d'émission des cristaux d'AgCl + Tl^+ dans la région spectrale rouge disparaît. Le premier effet peut s'expliquer en supposant l'existence de deux types de centres de luminescence (a, b). Dans [9], on a indiqué que chacun de ces deux centres a une série de niveaux excités et que la bande d'émission observée est finalement formée par la superposition des différentes transitions radiatives des électrons de la bande de conduction à ces niveaux. On pourrait se demander si ce déplacement signifierait qu'à 4 °K, les transitions de luminescence seraient plus favorables pour les niveaux d'énergie plus élevés et que, par contre, à 77 °K, elles seraient plus favorables pour les niveaux d'énergie plus bas (*) (par rapport à la bande de conduction). La disparition de la bande d'émission rouge des cristaux de AgCl + Tl^+ observée à 4 °K est cependant difficile à expliquer.

L'influence de l'impureté sur la bande d'émission principale est observée seulement à la température de l'azote liquide quand les effets de polarisation du réseau par l'impureté peuvent influencer les transitions radiatives. Le fort abaissement de l'intensité d'émission à 77 °K dans le cas des cristaux de AgCl + Cd^{++} est probablement dû à la décroissance de la concentration des lacunes cationiques libres sous l'influence des ions Cd^{++} qui peuvent constituer des complexes du type $Ag_{\square}^{-}$ Cd^{++} (lacune cationique + ion Cd^{++}).

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide à l'Université de Strasbourg. Il a été rendu possible grâce à une bourse du Gouvernement Français auquel l'un de nous (K. V.) exprime sa reconnaissance. Nous tenons à remercier M. le Pr S. Nikitine, Directeur du Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide pour ses précieux conseils ainsi que Mme Kiradijeffova pour la préparation des cristaux.

Manuscrit reçu le 21 avril 1961.

(*) Cette tentative d'explication est basée sur la théorie de Matyas [6]. D'autres explications ont également été envisagées. Elles sont encore à l'étude.

REFERENCES

[1] Farnel (G. C.), Bourton (T. C.) et Hallama (R.), *Phil. Mag.*, 1950, **41**, 157.
[2] Golub (I.), *Usp. Nauc. fot.*, Moscou, 1951, 203.
[3] Wiegand (A. D.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 52.
[4] Vacek (K.), *Czech. J. Phys.*, 1960, B **10**, 66.
[5] Berger (Z.), *Czech. J. Phys.*, 1961, B **11**, 74.
[6] Matyas (Z.), Halbleiter und Phosphore, Vorträge des Int. Koll. in Ga. — Pa., Vieweg, 1958, 426
[7] Vacek (K.), *Czech. J. Phys.*, 1958, **8**, 226.
[8] Nikitine (S.), *Phil. Mag.*, 1959, **4**, 37, 1.
[9] Vacek (K.), *J. Phys. Chem. Sol.*, 1960, **16**,

RAYONNEMENT DE FREINAGE DANS LES EXPÉRIENCES DE DIFFUSION MUON-PROTON

Par JEAN-MARIE ABILLON et PAUL KESSLER,
Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire du Collège de France.

Résumé. — En vue d'expériences de diffusion muon-proton dans une région où le transfert d'impulsion est de quelques centaines de MeV, nous avons calculé à l'aide de la méthode des processus quasi réels la contribution du rayonnement de freinage à la section efficace de diffusion. Le résultat obtenu doit être additionné avec la correction de Schwinger qui inclut à la fois les effets radiatifs virtuels et l'émission de photons réels de très basse énergie. On obtient ainsi la correction radiative totale, qui est fonction de l'énergie initiale du muon, de l'angle de diffusion, et de la largeur de résolution pour l'énergie finale. Une application numérique est donnée pour une énergie initiale de 2 GeV et différentes valeurs de l'angle de diffusion et de la largeur de résolution.

Abstract. — In relation with muon-proton scattering experiments in a region where the momentum transfer is several hundred MeV, we have calculated by the method of quasi-real processes the contribution of bremsstrahlung to the scattering cross-section. Our result has to be combined with the Schwinger correction, which includes both virtual radiative effects and emission of real photons with very low energy. One thus gets the total radiative correction as a function of initial energy of the muon, scattering angle, and resolution width for the final energy. A numerical application is given for an initial energy of 2 GeV and different values of the scattering angle and the resolution width.

Introduction. — Des expériences de diffusion de mésons μ sont actuellement en cours ou en préparation dans divers laboratoires. Le transfert d'impulsion (du muon au noyau-cible) se situe dans ces expériences entre 10^2 et 10^3 MeV. Leur but est de déceler dans ce domaine une anomalie éventuelle dans les sections efficaces de diffusion élastique : anomalie qui serait due soit à une structure du méson μ, soit à une interaction non électromagnétique entre le muon et le noyau.

En raison de la faible intensité des faisceaux de mésons μ susceptibles d'être obtenus (à partir de faisceaux de mésons π se désintégrant en vol), il est pratiquement impossible dans ces expériences d'avoir une bonne résolution sur l'énergie finale au voisinage du pic de diffusion élastique. Les sections efficaces mesurées incluront donc forcément une part d'effets inélastiques. Ces effets, dans le cas particulier de la diffusion muon-proton (que nous considérons ici) se réduisent au nombre de deux : rayonnement de freinage, et production de mésons π. Il est donc nécessaire de calculer ces effets (compte tenu des valeurs prévisibles pour la largeur de résolution sur l'énergie finale), pour pouvoir les soustraire des sections efficaces expérimentales et obtenir ainsi les valeurs correctes des sections efficaces de diffusion élastique. Dans le présent travail, c'est au calcul du premier des deux effets mentionnés que nous nous attaquons.

Notons que nos calculs seraient également (et même *a fortiori*, puisque nous utiliserons une approximation relativiste) valables pour la diffusion électron-proton dans le même domaine d'énergie, seule la masse de la particule diffusée variant d'un problème à l'autre. Mais du point de vue expérimental, nos résultats sont beaucoup moins utiles dans le cas de l'électron, pour lequel il est facile d'obtenir une bonne résolution, et en fait d'isoler le pic élastique. Signalons néanmoins que nous avons fait précédemment un calcul semblable pour la diffusion électron-noyau dans un domaine d'énergie où la structure nucléaire ne se manifeste pas encore [1].

Calcul du rayonnement de freinage par la méthode des processus quasi réels. — Nous utiliserons pour ce calcul la méthode d'approximation dite des processus quasi réels [1]. Cette méthode consiste à associer à un diagramme de Feynman élémentaire tel que celui représenté sur la figure 1 un spectre donné par :

$$P(E, k)\,\mathrm{d}k \simeq \frac{2\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{E}{m}\,\varphi_{\max} - \frac{1}{2}\right)\frac{\mathrm{d}k}{k}\left(1 - \frac{k}{E} + \frac{k^2}{2E^2}\right),$$

soit encore par l'expression équivalente :

$$P(E, E')\,\mathrm{d}E' \simeq \frac{\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{E}{m}\,\varphi_{\max} - \frac{1}{2}\right)\frac{\mathrm{d}E'}{E - E'}\,\frac{E^2 + E'^2}{E^2}.$$

Cette formule est valable à condition que le fermion entrant et sortant soit relativiste
$$(E, E' \gg m).$$
Elle permet dans de nombreux cas en électrodynamique de ramener un processus complexe à un processus plus simple en « amputant » le diagramme de Feynman correspondant.

Revenons à notre problème. Soit m et M les masses respectives du méson μ et du proton, E et E' respectivement l'énergie initiale et l'énergie

finale du méson μ, θ l'angle de diffusion, et Δ la largeur de résolution pour E'. Appelons encore E^* l'énergie finale correspondant au pic élastique, q le transfert d'impulsion pour la diffusion élastique, et enfin $E'_0(= E^* - \Delta)$ la limite inférieure sur l'énergie finale (coupure expérimentale du spectre). Nous prendrons un système d'unités où $c = 1$, $\hbar = 1$.

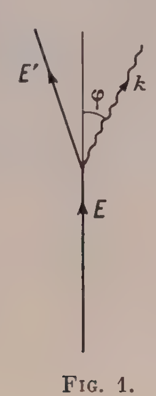


FIG. 1.

L'allure générale du spectre différentiel qui nous intéresse (pour un angle θ déterminé) est indiquée par la figure 2. Ce spectre contient le pic élastique

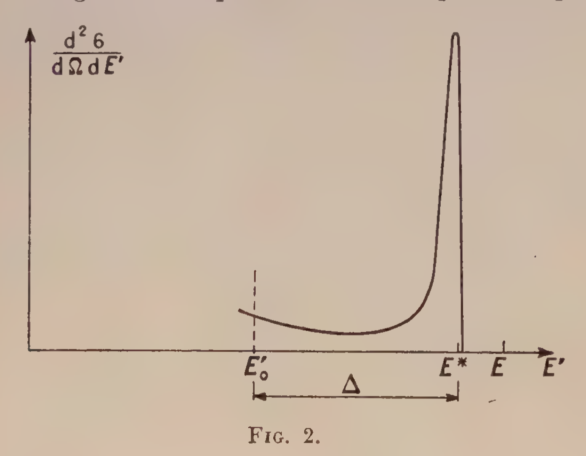


FIG. 2.

plus la queue due au rayonnement de freinage ; il se confond avec le spectre mesuré, une fois que l'on a déduit de celui-ci l'effet de production de mésons. Notons qu'il est impossible de séparer strictement le rayonnement de freinage du pic élastique, étant donné que dans le premier phénomène le photon émis peut avoir une énergie aussi voisine de zéro que l'on veut. Nous pouvons néanmoins opérer une telle séparation en introduisant un paramètre artificiel ε qui définit une limite inférieure pour l'énergie du photon émis.

La section efficace de rayonnement de freinage, intégrée sur le spectre d'énergie, dépendra de quatre paramètres : d'une part, les limites Δ et ε ; d'autre part, deux paramètres que l'on est libre de choisir parmi les trois quantités E, q et θ (liées entre elles par une relation). Nous choisissons $\varepsilon \ll \Delta$, et d'autre part nous postulons pour les paramètres q, θ et Δ les conditions expérimentales suivantes :

$$m \ll q < M \; ; \; \theta < 1 \text{ radian} \; ; \; \Delta < E/2.$$

On vérifie aisément qu'avec ces conditions nous sommes dans le domaine de validité de la méthode des processus quasi réels qui nous permettra ici de relier de façon directe, par la formule donnée plus haut, le rayonnement de freinage à la diffusion élastique.

En effet, nous avons à considérer les deux diagrammes (a) et (b) de la figure 3 ; chacun de ces

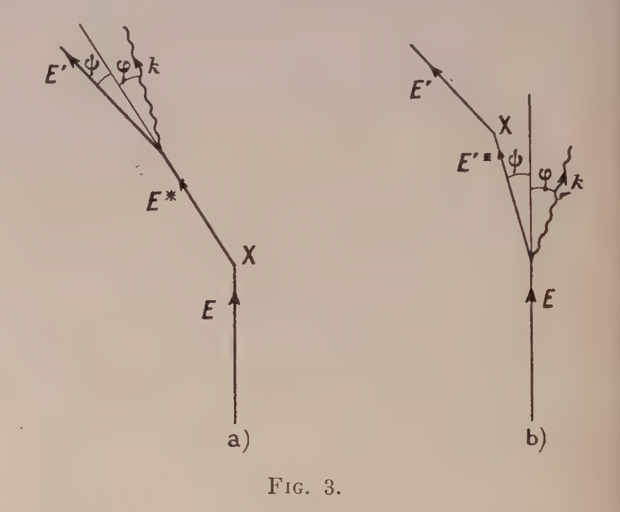


FIG. 3.

diagrammes contient un diagramme élémentaire du type de la figure 1, « branché » sur un processus de diffusion élastique. Les conditions posées entraînent le fait que les angles ψ et φ indiqués sur les deux diagrammes de la figure 3 sont essentiellement petits par rapport à l'angle total de diffusion θ. Il en découle deux simplifications importantes :

1° Pour chacun des diagrammes (a) et (b), l'angle de la diffusion élastique (qui intervient au vertex marqué d'une croix) peut être sensiblement confondu avec θ.

2° Nous pouvons négliger l'effet d'interférence entre les deux diagrammes, l'état final étant essentiellement différent dans les deux cas : dans le processus (a) le photon est émis à peu près dans la direction de la particule sortante, dans le processus (b) à peu près dans la direction incidente.

Soit σ_{el}, $\sigma_{\text{rf}}^{\text{a}}$ et $\sigma_{\text{rf}}^{\text{b}}$ les sections efficaces respectives de la diffusion élastique et du rayonnement de freinage correspondant au processus (a) ou (b). Pour la simplicité de l'écriture, nous définirons ces sections efficaces comme fonctions de l'énergie seulement, considérant les autres paramètres (θ, Δ, ε) comme fixes ; d'autre part, nous écrirons σ pour la section efficace différentielle $\mathrm{d}\sigma/\mathrm{d}\Omega$. Enfin, nous

écrirons directement les facteurs de branchement :

$$\delta^a = \sigma^a_{rf}(E)/\sigma_{el}(E)\ ;\ \delta^b = \sigma^b_{rf}(E)/\sigma_{el}(E).$$

On obtient immédiatement :

$$\delta^a = \int_{E'_0}^{E^*-\varepsilon} P(E^*, E')\, dE';$$

$$\delta^b = \int_{E'_0{}^*}^{E-\varepsilon} P(E, E'^*)\, dE'^*\, \sigma_{el}(E'^*)/\sigma_{el}(E),$$

où $P(E^*, E')$ et $P(E, E'^*)$ sont données par la formule des processus quasi réels. Les énergies intermédiaires E^* et E'^* se déduisent de E et E' par les relations bien connues de la cinématique de la diffusion élastique :

$$E^* = E\left(1 + \frac{2E}{M}\sin^2\frac{\theta}{2}\right)^{-1};\ E'^* = E'\left(1 - \frac{2E'}{M}\sin^2\frac{\theta}{2}\right)^{-1},$$

d'où également :

$$E'_0{}^* = E'_0\left(1 - \frac{2E'_0}{M}\sin^2\frac{\theta}{2}\right)^{-1}.$$

Le calcul de δ^a donne de façon immédiate :

$$\delta^a = \frac{2\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{E^*}{m}\varphi_{max} - \frac{1}{2}\right)$$
$$\left(\ln\frac{E^* - E'_0}{\varepsilon} - \frac{E^* - E'_0}{E^*} + \frac{(E^* - E'_0)^2}{4E^{*2}}\right).$$

Dans l'argument du premier facteur logarithmique, il est raisonnable de prendre, d'après les hypothèses faites plus haut : $\varphi_{max} \approx \theta$; d'autre part, on peut prendre $E^* \simeq E$ et noter que $E\theta \simeq q$. D'où :

$$\delta^a = \frac{2\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{q}{m} - \frac{1}{2}\right)\left(\ln\frac{\Delta}{\varepsilon} - \frac{\Delta}{E^*} + \frac{\Delta^2}{4E^{*2}}\right).$$

Le calcul de δ^b est considérablement plus difficile. Il faut considérer en détail la section efficace de la diffusion élastique d'un fermion (électron ou muon) relativiste par un proton (2) :

$$\sigma_{el}(E) = \frac{e^2}{4E^2}\frac{\cos^2\theta/2}{\sin^4\theta/2}\left(1 + \frac{2E}{M}\sin^2\theta/2\right)^{-1}$$
$$\left\{F_1^2 + \frac{c^2}{4M^2}[2(F_1 + KF_2)^2\,\mathrm{tg}^2\,\theta/2 + K^2F_2^2]\right\}.$$

Dans cette formule, K représente le moment magnétique anormal du proton ($K = 1{,}79$) ; F_1 et F_2 sont respectivement les facteurs de forme électrique et magnétique du proton, qui dépendent du quadrivecteur q (énergie-impulsion transférée dans la diffusion). Il est difficile d'avoir, à la lumière des données expérimentales (sur la diffusion électron-proton), une expression analytique précise de F_1 et F_2. Si nous utilisons pour la distribution de charge du proton le modèle dit « exponentiel », relativement simple et assez bien confirmé dans un large domaine d'énergie, ce modèle nous donne :

$$F_1 = F_2 = F = \left(1 + \frac{1}{12}a^2q^2\right)^{-2}$$

où l'on prend pour la constante a (« rayon » électromagnétique du proton) la valeur de 0,8 fermis $\simeq$ 4 (GeV)$^{-1}$; d'autre part, q^2 est donné par :

$$q^2 = 4E^2\sin^2\theta/2\left(1 + \frac{2E}{M}\sin^2\theta/2\right)^{-1}.$$

Comme nous avons à considérer dans notre problème un rapport de deux sections efficaces relatives à des énergies différentes, nous ne garderons dans l'expression de σ_{el} que les facteurs qui varient fortement avec l'énergie. Compte tenu des conditions initiales, cela nous donne :

$$\sigma_{el}(E) \propto E^{-2}F^2.$$

D'autre part, dans l'expression de F, nous prendrons (compte tenu toujours de nos hypothèses) : $q^2 \simeq 4E^2\sin^2\theta/2$, ce qui nous donne :

$$F^2 \simeq (1 + l^2E^2)^{-4}$$

où

$$l = \frac{1}{\sqrt{3}}a\sin\frac{\theta}{2}.$$

Avec ces simplifications, on a :

$$\delta^b = \int_{\prime *}^{E-\varepsilon} P(E, E'^*)\, dE'^*\,\frac{E^2}{E'^{*2}}\frac{(1 + l^2E^2)^4}{(1 + l^2E'^{*2})^4},$$

soit encore :

$$\delta^b = \frac{\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{q}{m} - \frac{1}{2}\right)\int_{E'_0{}^*}^{E-\varepsilon}\frac{dE'^*}{E - E'^*}$$
$$\frac{E^2 + E'^{*2}}{E'^{*2}}\frac{(1 + l^2E^2)^4}{(1 + l^2E'^{*2})^4}.$$

L'intégration, assez fastidieuse, donne finalement :

$$\delta^b = \frac{2\alpha}{\pi}\left(\ln\frac{q}{m} - \frac{1}{2}\right)\left[\ln\frac{E - E'^*}{\varepsilon} + f(lE, lE'_0{}^*)\right]$$

où $f(lE, lE'_0{}^*)$ sera donné par l'expression ci-dessous. Pour simplifier l'écriture, nous posons :

$$x = lE,\ x_0 = lE'_0{}^*,$$

et d'autre part :

$$u = 1 + x^2,\ u_0 = 1 + x_0^2.$$

Nous avons :

$$f(x, x_0) = \frac{1}{4}\ln\frac{ux^2}{ux_0^2} + \frac{1}{4}(u^4 - 1)\ln\frac{u_0\,x^2}{u\ \ x_0^2}$$

$$+ \frac{1}{32}[(5u^3 + 6u^2 + 8u + 16)$$

$$- x^2(35u^3 + 30u^2 + 24u + 16)]\ x\ \mathrm{arc\ tg}\frac{x - x_0}{1 + x_0 x}$$

$$+ \frac{1}{96}\left\{8(1 - x_0 x)\frac{u^2}{u_0^2} + 2[6 - x_0 x(5u + 6)]\frac{u}{u_0}\right.$$

$$+ 3[8 - x_0\, x(5u^2 + 6u + 8)]\Big\}\, \frac{u}{u_0}\, \frac{x^2 + x_0^2}{x_0^2}$$

$$- \frac{1}{96}\Big\{ 2[2(2 + 9x_0^2 + 6x_0^4) - x_0\, x(8 + 25x_0^2 + 15x_0^4)]\, \frac{u^2}{u_0^2}$$

$$+ 2[6(1 + 2x_0^2) - x_0\, x(5u + 6)(3x_0^2 + 2)]\, \frac{u}{u_0}$$

$$+ 3\Big[8 - 16\, \frac{x_0}{x} - 3x_0\, x(5u^2 + 6u + 8)\Big]\Big\}\, u\, \frac{x^2}{x_0^2}$$

$$- \frac{1}{96}\, (92 + x^2 + 311x^4 + 331x^6 + 105x^8).$$

La somme de δ^a et δ^b nous donne la contribution du rayonnement de freinage dans les limites définies. Toutefois, si nous voulons déterminer la correction radiative totale, et en même temps éliminer le paramètre artificiel ε, nous devons ajouter un troisième terme δ^S qui est la correction radiative calculée par Schwinger [3], et qui correspond :

1° Aux effets virtuels, c'est-à-dire à l'émission et à la réabsorption d'un photon virtuel ; 2° A l'émission d'un photon réel de très basse énergie ($k < \varepsilon$).

Ce terme est donné dans le cas relativiste par :

$$\delta^S = -\frac{4\alpha}{\pi}\Big[\Big(\ln\frac{q}{m} - \frac{1}{2}\Big)\Big(\ln\frac{E}{\varepsilon} - \frac{13}{12}\Big) + \frac{17}{72} + \Phi(\theta)\Big],$$

où $\Phi(\theta)$ est une fonction compliquée, qui se réduit cependant pour $\theta < 1$ radian à :

$$\Phi(\theta) \simeq \frac{\theta^2}{16}\Big(\ln\frac{4}{\theta^2} + 1\Big).$$

Il ne reste plus qu'à additionner les trois termes pour obtenir la correction radiative totale :

$$\delta = \delta^a + \delta^b + \delta^S = \frac{2\alpha}{\pi}\Big\{\Big(\ln\frac{q}{m} - \frac{1}{2}\Big)\Big[f(lE, lE_0'^*)$$

$$- \ln\frac{E^2}{\Delta(E - E_0'^*)} - \frac{\Delta}{E^*} + \frac{\Delta^2}{4E^{*2}} + \frac{13}{6}\Big]$$

$$- \frac{17}{36} - 2\Phi(\theta)\Big\}.$$

Application numérique. — Une expérience qui est actuellement en préparation au C. E. R. N. prévoit la diffusion de mésons μ d'une énergie de 2 GeV sur des protons ; l'angle de diffusion pourra varier entre 10° et 30° (ce qui correspond à un transfert d'impulsion compris entre 340 et 1 020 MeV), et la résolution sur l'énergie finale sera certainement de l'ordre de quelques centaines de MeV.

Nous donnons dans le tableau ci-après les résultats que nous obtenons pour δ (en pour-cent) en fonction de différentes valeurs de θ et Δ.

θ/Δ (GeV)	0,80	0,55	0,30
30°	14,60	5,17	0,50
20°	3,25	1,27	— 0,70
10°	0,40	— 0,15	— 0,84

Il convient de noter que pour $\theta = 30°$ ($q \simeq M$), nous sommes déjà à la limite de nos conditions initiales ; d'autre part, il semble, d'après des expériences récentes [4] sur la diffusion électron-proton, que le modèle exponentiel ne soit plus valable dans ce domaine, la décroissance du facteur de forme électrique (en fonction de q^2) apparaissant comme moins rapide que ne le prédit ce modèle. Les approximations que nous avons faites d'une part, le choix du modèle d'autre part, nous ont sans doute conduit à une surestimation des valeurs de δ pour 30° ; les résultats donnés pour cet angle peuvent donc être considérés comme des bornes supérieures.

D'autre part, le fait d'avoir utilisé une approximation relativiste introduit pour l'ensemble des résultats une erreur relative qui est au maximum de l'ordre de $(\ln q/m)^{-1}$. Cette erreur est évidemment particulièrement sensible pour $\theta = 10°$ ($q \simeq 3m$), mais il apparaît que pour cette valeur la correction radiative est de toute façon pratiquement négligeable, quelle que soit la résolution.

Malgré leur caractère approximatif, les chiffres donnés ci-dessus (chiffres qui permettent d'ailleurs une interpolation facile pour des valeurs intermédiaires de θ et Δ) peuvent être d'une grande utilité pour les expérimentateurs. Ils doivent en effet leur permettre de déterminer la résolution à obtenir pour un angle de diffusion donné (autrement dit, de décider des moyens de détection à mettre en œuvre pour le faisceau de muons sortant sous cet angle) en fonction de la borne qu'ils entendent assigner à la correction radiative.

Nous désirons remercier MM. L. Goldzahl et J. Banaigs, avec qui nous avons eu de fructueuses discussions. Nous tenons d'autre part à signaler que ce travail a bénéficié de l'aide du Commissariat à l'Énergie Atomique, ainsi que du Centre National de la Recherche Scientifique.

Manuscrit reçu le 9 mai 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Kessler (P.), *Nuovo Cimento*, 1960, **17**, 809.
[2] Hofstadter (R.), *Ann. Rev. Nucl. Science*, 1957, **7**, 231 (voir formule 89).
[3] Schwinger (J.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 790.
[4] Hofstadter (R.), Bumiller (F.) et Croissiaux (M.), *Phys. Rev. Letters*, 1960, **5**, 263.

PREMIERS NIVEAUX EXCITÉS DU PLATINE 190

Par Jerzy JASTRZEBSKI (*) et Pierrette KILCHER,
Laboratoire Joliot-Curie, Physique Nucléaire, Orsay.

Résumé. — La désintégration de ^{190}Au a été étudiée à l'aide d'un spectromètre β à focalisation intermédiaire et des techniques de comptage par scintillations. On a déterminé le rapport : $r = B\ (E2\ ;\ 2' \rightarrow 2)/B(E2\ ;\ 2' \rightarrow 0)$ par la mesure des intensités des raies de conversion. On compare les énergies des trois premiers états excités et les valeurs de r pour les différents isotopes pair-pair du platine.

Abstract. — The decay of ^{190}Au has been investigated with an intermediate image β ray spectrometer and with scintillation techniques. The ratio $r = B(E2\ ;\ 2' \rightarrow 2)/B(E2\ ;\ 2' \rightarrow 0)$ has been determined by measurement of conversion electron intensities. Comparison of the energies for the first three excited levels and the r value is given for different even-even Pt nuclei.

Les noyaux pair-pair dans le domaine transitoire entre les régions déformées et sphériques ont été récemment beaucoup étudiés du point de vue théorique et expérimental. La théorie de Davydov et Filippov [1] partant d'une conception d'un rotor asymétrique explique certaines des propriétés de ces noyaux. Récemment Jean [2] a montré que les noyaux pair-pair peuvent être aussi traités par une théorie plus conventionnelle, en introduisant un modèle qui effectue une transition graduelle entre les oscillations quadrupolaires des noyaux sphériques et les vibrations et rotations des noyaux déformés. Les résultats obtenus ainsi sont qualitativement semblables à ceux de Davydov et Filippov au moins en ce qui concerne la variation du rapport $r = B(E2\ ;\ 2' \rightarrow 2)/B(E2\ ;\ 2' \rightarrow 0)$ avec $E(2'+)/E(2+)$.

Du point de vue théorique il est intéressant de pouvoir comparer les états excités de différents isotopes du même élément. Il existe de nombreux travaux sur les noyaux de ^{192}Pt, ^{194}Pt et ^{196}Pt [3, 4, 5, 14, 15]. Par contre les transitions de ^{190}Pt jusqu'à ce jour ont été peu étudiées. Ce noyau a été identifié indépendamment par G. Albouy et col. [6] et Anderson et Ringh [7] comme le dernier membre de la désintégration ^{190}Hg $\rightarrow$ ^{190}Au $\rightarrow$ ^{190}Pt. Les mesures de G. Albouy ont été effectuées par des méthodes de spectrométrie γ sur des sources séparées isotopiquement. Andersson en utilisant la même méthode pour la préparation des sources s'est servi d'un spectromètre β comme appareil de mesure. Il signale deux transitions à 295 keV et 301 keV dont, pour des raisons d'intensités, la première va au niveau fondamental.

Nous avons repris l'étude de ^{190}Pt afin de pouvoir déterminer les propriétés de ses premiers niveaux excités et les comparer avec les autres isotopes du platine. Nos sources ont été obtenues par irradiation d'or massif (1,7 g) avec des protons de 94 MeV du synchrocyclotron d'Orsay et ensuite par séparation isotopique [8] de ^{190}Hg. La séparation faite sur cette quantité d'or durait habituellement 5 minutes, temps nécessaire pour fondre le métal dans la source d'ions du séparateur. Ce temps de 5 minutes a été déterminé par collection de ^{193}Hg contenu dans la même masse d'or et par observation de l'activité collectée directement sur un compteur à scintillations monté au deuxième étage du séparateur [8, 9]. Pour la spectroscopie γ la collection des ions de ^{190}Hg se faisait sur une feuille d'aluminium. Les sources pour la spectroscopie β ont été déposées directement sur un support en acétate de cellulose avec un dépôt d'aluminium de 1,3 mm de diamètre. Pendant les premières 90 minutes après la séparation nous nous sommes servis de ces sources pour observer les transitions de ^{190}Au [10]. Après ce temps l'activité de ^{190}Hg ($T_{1/2} = 20{,}4$ min devenait négligeable par rapport à celle de ^{190}Au ($T_{1/2} = 39{,}5$ min).

Nous avons mesuré le spectre γ à l'aide de cristaux de NaI(Tl) de 1 1/2″ × 1″ et de 3″ × 3″. Les valeurs des énergies des principaux pics observés sont en très bon accord avec les résultats de G. Albouy et coll. [6]. La seule différence est l'existence d'un faible pic d'annihilation de 511 keV ainsi qu'un pic photoélectrique de 440 keV. En comparant l'intensité du pic d'annihilation avec la raie X_K nous trouvons pour le rapport β^+/capture K une valeur voisine de 2 %, un peu plus grande que la limite supérieure de 1 % assignée par [6]. Nous avons étudié aussi le spectre γ en coïncidence avec la raie la plus importante de 300 keV. Le spectre résultant montre un fort pic apparaissant à l'énergie $\sim$ 300 keV, ce qui indique

(*) De l'Institut de Recherches Nucléaires, Varsovie.

qu'il y a deux transitions γ d'environ la même énergie en coïncidence. D'autre part une partie au moins de la raie de 600 keV, déjà mise en évidence par [6], est en coïncidence avec un ou les deux γ de 300 keV.

Pour pouvoir déterminer le rapport r nous avons étudié le spectre des électrons de conversion à l'aide d'un spectromètre à focalisation intermédiaire type Siegbahn-Slätis. La détection des électrons se faisait soit à l'aide d'un compteur G. M. soit d'un cristal d'anthracène. La résolution du spectromètre était $\sim 1{,}2$ % dans le meilleur cas.

Nous avons étudié plus particulièrement les deux domaines d'énergie des électrons de conversion correspondants aux transitions de 300 keV et de 600 keV. Huit raies d'électrons de conversion ont été mises en évidence et leurs énergies, intensités relatives et attributions proposées sont données dans le tableau 1.

TABLEAU I

RAIES DE CONVERSION OBSERVÉES DANS LA DÉSINTÉGRATION DE ^{190}Au

ÉNERGIE keV	INTENSITÉ	ATTRIBUTION
217,0	100	295 — K
222,6	31 ± 5	301 — K
240,6	8 ± 1	319 — K
282,7	54 ± 10	295 — L
289,8	27 ± 9	301 — L + 295 — M
519,6	3 ± 0,7	598 — K
544,7	1,5 ± 0,5	623 — K
580,0	faible	598 — L

Nous estimons que les valeurs relatives en $B\rho$ sont exactes à 3.10^{-3} près et les valeurs absolues à 10^{-2}. On voit qu'aux erreurs relatives près la transition de 598 keV peut être considérée comme le cross-over d'une cascade d'un γ de 301 keV et d'un γ de 295 keV. En accord avec Andersson nous trouvons que la transition de 295 keV est plus intense et va au niveau fondamental. Nous ne pouvons pas décomposer suffisamment bien les deux raies de conversion L et M de 295 keV et 301 keV pour donner la limite de pourcentage de $M1$ dans cette dernière transition. Étant donné que dans les autres noyaux de platine cette limite n'est pas supérieure à 5 %, nous allons considérer par la suite la transition $2'+ \to 2+$ comme $E2$ pure. Ainsi, d'après les intensités relatives des raies de conversion K, on peut calculer le rapport des probabilités réduites de cascade cross-over :

$$r = 85 \pm 30.$$

L'erreur sur cette valeur de r ne tient compte que des erreurs commises sur les intensités des raies de conversion. La présence de mélange de $M1$ dans la transition de 301 keV pourrait diminuer ce rapport. Ainsi, en supposant qu'il y a 10 % de $M1$ on trouve $r = 55$ au lieu de 85.

Sur la figure 1 nous comparons la variation de ce rapport en fonction du nombre de neutrons N pour

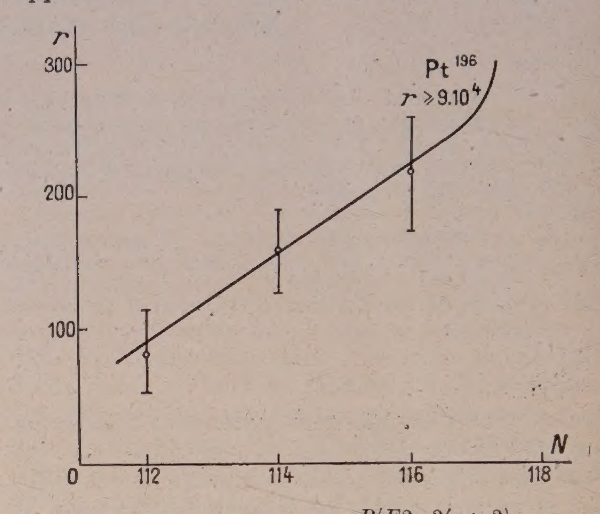


FIG. 1. — Variation de $\frac{B(E2\ ;\ 2' \to 2)}{B(E2\ ;\ 2' \to 0)}$ en fonction de N pour les noyaux pair-pair du platine.

les différents isotopes du platine. Les valeurs expérimentales pour ^{192}Pt et ^{196}Pt sont celles données par Van Patter [3]. Pour ^{194}Pt nous avons calculé ce rapport d'après les données précises d'intensités des raies de conversion K mesurées par Bäckström et coll. [4]. Nous avons utilisé les valeurs théoriques de α_K calculées par Rose.

Dans ^{190}Pt, outre les trois transitions $2'+ \to 2+$, $2'+ \to 0+$ et $2+ \to 0+$ le spectre des électrons de conversion révèle deux autres raies que nous avons interprétées comme K de 319 keV et K de 623 keV. Il est intéressant de remarquer que, si cette interprétation est correcte on peut composer, aux erreurs relatives près, les deux sommes suivantes :

$$E_\gamma(295 \text{ keV}) + E_\gamma(623 \text{ keV}) = 918 \pm 3 \text{ keV}$$
$$E_\gamma(598 \text{ keV}) + E_\gamma(319 \text{ keV}) = 917 \pm 3 \text{ keV}.$$

Ainsi on pourrait avoir un niveau de 918 keV qui serait le troisième niveau excité de ^{190}Pt. Les résultats des coïncidences γ-γ qui montrent l'existence d'une raie de 600 keV en coïncidence avec les γ de 300 keV confirme aussi cette conclusion. Ce niveau correspondrait au niveau mis en évidence dans ^{194}Pt [4] et aussi dans ^{192}Pt [5, 12, 13].

La théorie de Davydov et Filipov prévoit l'existence d'un niveau $3+$ pour lequel l'énergie peut être déterminée par la relation :

$$E(3+) = E(2+) + E(2'+).$$

Les récentes mesures de corrélations angu-

laires [11] dans ^{192}Pt ont montré que le spin du niveau de 921 keV dans ^{192}Pt est 3.

D'après [4] le niveau à 923 keV dans ^{194}Pt a probablement le spin 4+, mais la possibilité de 3+ ne peut pas être exclue.

Sur la figure 2 nous représentons la variation de l'énergie des premiers niveaux excités des isotopes

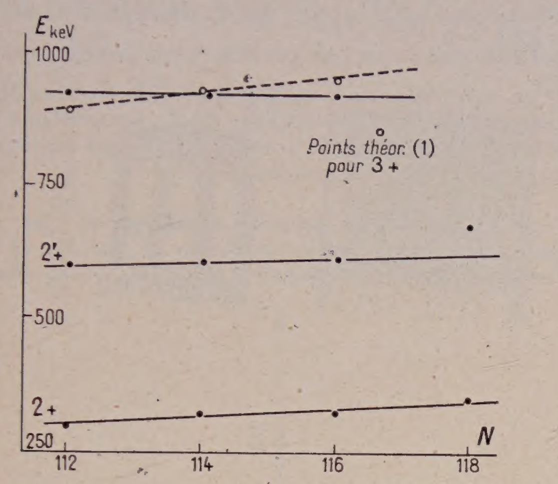


Fig. 2. — Comparaison de l'énergie des premiers niveaux excités dans les noyaux pair-pair de platine.

du platine avec le nombre de neutrons N. Sur cette figure nous avons aussi indiqué le niveau de 918 keV de ^{190}Pt et la courbe théorique [1] pour le niveau 3+. (Dans la littérature on annonce l'existence d'un autre niveau dans ^{192}Pt à l'énergie 785 keV. Nous ne l'avons pas marqué sur la figure 2 d'autant plus qu'il semble y avoir un désaccord entre [5] et [12, 13] en ce qui le concerne. Nous ne pouvons rien dire sur un tel niveau dans ^{190}Pt.)

D'après la figure 2 on voit que l'énergie des premiers niveaux des noyaux pair-pair de Pt change d'une façon monotone avec le nombre de neutrons N. Le point tombant nettement en dehors des lignes droites est le niveau 2'+ dans ^{196}Pt, le noyau ayant comme autre particularité le rapport r très grand.

Il est intéressant de remarquer que dans la théorie développée par Davydov et Filippov ainsi que dans celle de Jean, le rapport $E(2'+)/E(2+)$ ne peut pas être plus petit que 2. Dans les noyaux de platine il est plus petit pour le nombre de neutrons $N = 114, 116$ et 118 mais plus grand pour $N = 112$. Ce fait ne semble pas avoir une influence sur les propriétés de ces noyaux.

Nous remercions Mme N. Marty pour l'aide et l'intérêt constant qu'elle a portés à ce travail et pour les nombreuses discussions sur les résultats de nos mesures.

Ce travail n'a pu être mené à bien que grâce aux nombreuses séparations isotopiques effectuées par l'équipe du séparateur d'isotopes de M. Bernas et plus particulièrement M. Sarrouy et M. Camplan et nous les en remercions vivement.

Nous remercions l'équipe de synchrocyclotron pour les irradiations qu'elle a effectuées.

L'un de nous (J. J.) remercie les autorités françaises pour une bourse Louis de Broglie qui lui a été attribuée au cours de ce travail.

Manuscrit reçu le 29 avril 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Davydov (A.) et Filippov (G.), *Z. Eksp. Teor. Fiz.*, 1958, **35**, 440. *Nuclear Physics*, 1958, **8**, 237.

[2] Jean (M.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 416. *Nuclear Physics*, 1960, **21**, 142.

[3] Van Patter (D. M.), *Nuclear Physics*, 1959-1960, **14**, 42. Cette référence contient les données bibliographiques concernant les travaux antérieurs au 1er juillet 1959.

[4] Bäckström (G.), Bergman (O.), Burde (J.) et Lindskog (J.), *Nuclear Physics*, 1960, **15**, 566.

[5] Bäckström (G.), Bergman (O.), Travail en cours de préparation annoncé dans la ref. 4.

[6] Albouy (G.), Bernas (R.), Gusakoc (M.), Poffe (N.) Teillac (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **249**, 407.

[7] Andersson (G.) et Ringh (R.), *Ark. Fysik.*, 1960, **18**, 385.

[8] Bernas (R.), Sarrouy (J. L.) et Camplan (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 191 A.

[9] Albouy (G.), Gusakow (M.), Poffe (N.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 751.

[10] Jastrzebski (J.), Kilcher (P.), Communication présentée au Congrès de la Société de Physique à Strasbourg, mai 1961.

[11] Butt (D. K.), *Proc. Phys. Soc.*, 1960, **75**, Pt1. 61.

[12] Strominger (D.), Hollander (J. M.) Seaborg (G. T.) Table of Isotopes.

[13] Dzelepow (B. S.), Peker (L. K.), Decay Schemes of Radioactive Nuclei.

[14] Marinkov (L.), Mladenovic (M.), Zupancic (M.), Stepic (R.), *Bull. Inst. Nucl. Sci., Boris Kidrich*, 1960, **10**, 7.

[15] Mladjenovic (M.), Novakov (T.), Zupancic (M.), *Bull. Inst. Nucl. Sci., Boris Kidrich*, 1960, **10**, 15.

LETTRE A LA RÉDACTION

LE FERROMAGNÉTISME FAIBLE A L'APPROXIMATION DU CHAMP MOLÉCULAIRE

Par A. HERPIN,

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique, Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

Considérons une substance magnétique dont les ions peuvent être décomposés en deux sous-réseaux A et B également peuplés, la symétrie étant telle qu'on ne puisse passer de A à B par inversion autour d'un centre. D'après Dzialoshinski et Moriya on peut écrire l'énergie magnétique, à l'approximation du champ moléculaire, sous la forme

$$W = \lambda M_A M_B + D\, M_A \wedge M_B - H(M_A + M_B)$$

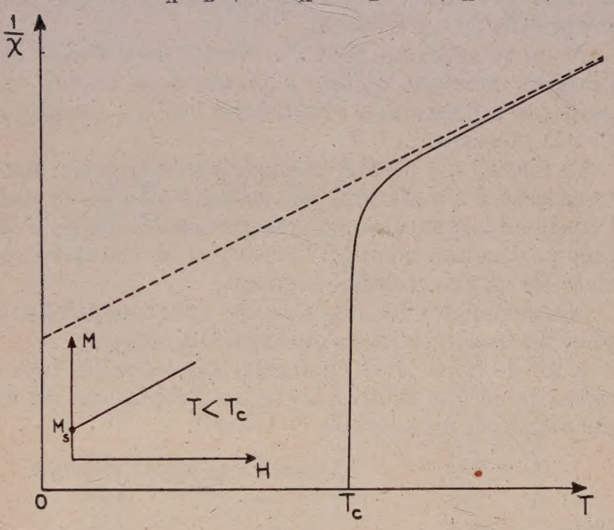


FIG. 1.

M_A et M_B étant les aimantations des deux sous-réseaux, λ une constante positive et D un vecteur que l'on suppose dirigé suivant Oz. On en déduit les champs moléculaires agissant sur les atomes A et B :

$$H_A = H - \lambda M_B + D \wedge M_B$$
$$H_B = H - \lambda M_A - D \wedge M_A.$$

a) **A haute température**, nous aurons donc :

$$M_A = \frac{C}{T}[H - \lambda M_B + D \wedge M_B]$$

$$M_B = \frac{C}{T}[H - \lambda M_A - D \wedge M_A].$$

Si H est parallèle à Oz, la susceptibilité est, comme pour un antiferromagnétique normal

$$\chi = \frac{C}{T + C\lambda}$$

où $- C\lambda$ est la température de Curie $- \theta$.

Si au contraire H est perpendiculaire à Oz, par exemple parallèle à Ox, les aimantations M_A et M_B ont pour composantes :

$$M_A^x = M_B^x = C \cdot \frac{C\lambda - T}{C^2(\lambda^2 + D^2) - T^2} \cdot H\,;$$

$$M_A^y = - M_B^y = C \cdot \frac{CD}{C^2(\lambda^2 + D^2) - T^2}$$

ce qui montre l'existence de composantes transverses M_A^y et M_B^y. On en déduit pour l'inverse de la susceptibilité

$$\frac{1}{\chi} = \frac{T_c + T}{C}\left(\frac{T_c - T}{\theta - T}\right)$$

où $T_c = C\sqrt{\lambda^2 + D^2}$. Le module de D étant très petit devant λ, on voit sur la formule précédente que $\frac{1}{\chi}$ a un comportement analogue à celui d'un antiferromagnétique, sauf au voisinage de T_c, température pour laquelle l'inverse de la susceptibilité tend rapidement vers zéro, comme le montre la figure 1.

b) **Au-dessous du point de transition T_c**, les deux sous-réseaux ont une aimantation $M_A = M_B$ en l'absence de champ, les vecteurs M_A et M_B étant dans le

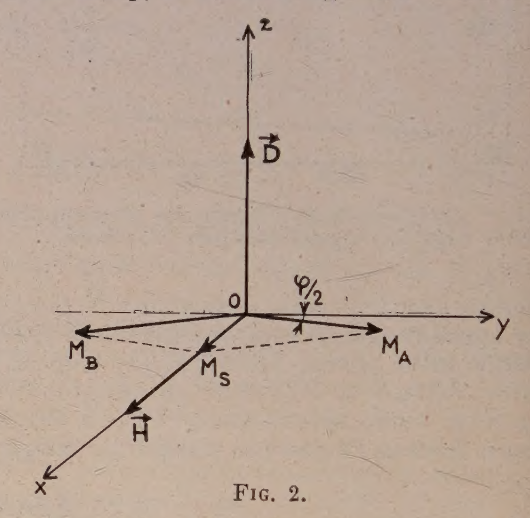


FIG. 2.

plan perpendiculaire à D et faisant entre eux un angle (*fig.* 2)

$$\varphi = \frac{D}{\lambda}.$$

D'où une aimantation spontanée très faible,

$$M_s = M_A \cdot \frac{D}{2\lambda}.$$

Pour un champ parallèle à D, l'aimantation a une composante qui est parallèle au champ et lui est proportionnelle :

$$M = \frac{H}{2\lambda(1 + D^2/4\lambda^2)}.$$

Pour un champ perpendiculaire à D, l'aimantation se présente sous la forme

$$M = \frac{D}{2\lambda} M_A + \frac{H}{2\lambda}.$$

C'est-à-dire que l'aimantation présente à la fois les propriétés de celle d'un ferromagnétique $\left(\text{aimantation spontanée } \frac{DM_A}{2\lambda}\right)$ et d'un antiferromagnétique (variation linéaire avec le champ, la susceptibilité différentielle étant indépendante de la température).

Manuscrit reçu le 14 juin 1961.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 3e trim. 1961. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).